



Titre: Amélioration du combustible nucléaire en utilisant des matériaux tolérants aux accidents
Title:

Auteur: Ahmed Naceur
Author:

Date: 2018

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Naceur, A. (2018). Amélioration du combustible nucléaire en utilisant des matériaux tolérants aux accidents [Mémoire de maîtrise, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/3181/>
Citation:

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/3181/>
PolyPublie URL:

Directeurs de recherche: Guy Marleau
Advisors:

Programme: Génie énergétique
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

AMÉLIORATION DU COMBUSTIBLE NUCLÉAIRE EN UTILISANT DES
MATÉRIAUX TOLÉRANTS AUX ACCIDENTS

AHMED NACEUR
DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHYSIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES
(GÉNIE ÉNERGÉTIQUE)
JUILLET 2018

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

AMÉLIORATION DU COMBUSTIBLE NUCLÉAIRE EN UTILISANT DES
MATÉRIAUX TOLÉRANTS AUX ACCIDENTS

présenté par : NACEUR Ahmed

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. TEYSSEDOU Alberto, Ph. D., président

M. MARLEAU Guy, Ph. D., membre et directeur de recherche

Mme VARIN Élisabeth, Ph. D., membre externe

DÉDICACE

À celle qui a tout donné, Dédé.

À ma mère et à mon père.

REMERCIEMENTS

Je suis parfaitement conscient et de plus en plus convaincu que je ne peux en aucun cas exprimer ma gratitude envers toutes les personnes qui m'ont épaulé et qui m'ont soutenu pour mon travail de maîtrise. Certains, par leurs présences seulement, par leurs sourires, faisaient ma journée. Mes remerciements vont en tout premier lieu à celle qui m'a appris à lire et à écrire, *maman*, et à celui qui s'est tant battu sans presque jamais le voir se reposer, *mon père*. Je remercie mon Directeur de recherche, *Pr. Guy Marleau*, d'avoir considéré ma candidature, de m'avoir accepté pour ce projet, de m'avoir tenu par la main, de m'avoir montré le chemin et de m'avoir consacré tout ce temps. Grâce à sa patience, sa rigueur, sa haute disponibilité, son attention et son haut professionnalisme, ces travaux de recherches ont pu être réalisés. Sous sa direction, une majeure partie de ce travail a été reprise au moins trois fois de suite, des complications administratives ont fait surface à plus d'une reprise et il m'a certainement appris que l'assiduité, la patience et le silence résoudront une grande part de l'anomalie. Cela dit que j'ai tant appris de lui et je continue d'en apprendre à chaque jour. Je suis très fier d'avoir eu une chance à côtoyer le *Pr. Alberto Teyssedou*. Je le remercie de m'avoir encouragé et incité à venir poser mes questions, à partager mes réflexions, à frapper à sa porte tôt le matin comme tard le soir, de m'avoir permis de le déranger dans son laboratoire ou même dans les couloirs menant à sa voiture sans préavis ni de rendez-vous. Par son état d'esprit et son état d'âme exceptionnels, des moments uniques m'ont laissé admirer son savoir et sa haute pédagogie. Je remercie également le *Pr. Alain Hébert* pour les magnifiques matinées du cours de neutronique et aussi d'avoir répondu à certaines questions liées à ce projet. Je remercie le *Pr. Jean Koclas* pour ses précieux conseils. Je remercie *Dr. Élisabeth Varin* d'avoir accepté de faire membre du jury. Je remercie ma fiancée *Yasamin Majedi* qui a lu, relu et corrigé la syntaxe des deux publications. Je remercie spécialement *L'Hon. Thomas Mulcair* et surtout la très distinguée *Mme. Mathilde Rogue* pour leur aide inconditionnelle. Je tiens à remercier la formidable *Lyne Dénommé* et la magnifique *Joanne Sirois*, sans elles certaines tâches auraient certainement pu être un fardeau. Je remercie ceux de qui j'ai tant appris, mes collègues à l'IGN : *Haykel Raouafi*, *Najoua Bejaoui*, *Atyab Calloo*, *Mehdi Mahjoub*, *Akila Hidouche*, *Sarra Zoghlami*, *Darren Hall*, *Franco Cascella*, *Luca Liponi*, *Aaron Greganti*, *Clément Liegeard* et *Sylvie Musongela*.

RÉSUMÉ

Quelques mois suivant l'accident de Fukushima Daiichi (11 Mars, 2011), un effort de RD&D américain, français et japonais s'est assidûment déployé en vue d'un remplacement du crayon de combustible nucléaire actuel ($\text{U}[\text{Pu}]\text{O}_2/\text{Zr}$) par un second dit "*tolérant aux accidents*", dans l'optique d'une adoption dans les assemblages des réacteurs à eau légère pour la fin de l'année 2022. Cet effort est mené sous le nom de projet ATF ("*Accident Tolerant Fuels*"), reprenant ainsi le même terme évoqué par le Congrès des États-Unis peu de jours après l'incident. Les alliages ferritiques (FeCrAl et APMT), l'austénitique (310SS) et le silicium-carbone (SiC) forment trois classes de candidats susceptibles de réduire au moins de 100 fois la cinétique d'oxydation du Zircaloy au delà de 1204 °C, de réduire l'enthalpie du cœur, de retarder le point d'éclatement du crayon et d'agir comme barrière au transport d'oxygène à haute pression. La stabilité thermo-mécanique de ces nouveaux crayons dans un environnement d'eau légère, à faibles et hauts burnups, en état stationnaire et transitoire venait d'être rendue publique par le laboratoire américain d'Oak Ridge. Ce projet de recherche consiste à quantifier l'impact neutronique d'un tel remplacement de la gaine au Zircaloy dans la filière CANDU-6 (Canada Deuterium Uranium) des réacteurs à eau lourde, en conditions nominales d'opération et en conditions accidentelles anticipées.

Les pénalités neutroniques de ^{56}Fe et de ^{59}Ni , respectivement, observées pour les alliages ferritiques et austénitique impliquent un changement de la politique canadienne actuelle vers un besoin en enrichissement. Une stratégie d'enrichissement en ^{235}U est développée et un critère de convergence de criticité moyenne de la grappe CANLUB est adopté. L'accumulation de poison, d'actinides et de produits de fission est suivie à chaque pas de burnup. Un calcul multigroupes a permis de quantifier les taux d'absorption des gaines par rapport à la pastille d' UO_2 . Le degré de durcissement du flux neutronique est suivi dans le combustible, la gaine et le modérateur. Ce durcissement est également quantifié dans les régions internes et externes du cœur, et ce, à différentes hauteurs et différentes périodes précédant le début du processus de rechargement. L'effet des barres de régulation liquides et solides sur l'aplanissement du flux est étudié. L'effet du durcissement du flux sur le profil radial et axial des puissances de canal et de grappe est quantifié. Un raffinement des conditions de discrétisation de la pastille et une considération de son inhomogénéité ont permis une comparaison fine de l'autoprotection spatiale des résonances. L'augmentation du volume du caloporteur, du volume de la pastille et du volume de l'espace d'hélium sont les trois schémas d'optimisation proposés et étudiés pour contrer les pénalités des gaines et les coûts en enrichissement. Une chaîne de calcul transport-diffusion est appelée d'une manière itérative pour évaluer les besoins en poison neutronique

au début du cycle. Au long du cycle, la conformité de l'opération du nouveau combustible est comparée aux limites d'exploitation du CANDU-6. Un schéma de rechargement à 8 grappes ("*8-bundle shift*") basé sur le modèle d'âge du canal est implémenté et testé pour tous les systèmes à l'étude. Une éventuelle perte totale et soudaine des mécanismes de contrôle de réactivité est simulée avant et pendant le pic ^{239}Pu . La réponse de chaque système à un retour, tant progressif qu'instantané, à la normale est suivie à chaque heure du déroulement de l'accident. La perturbation des propriétés locales des grappes et globales du cœur a permis de quantifier les nouveaux coefficients de réactivité et de comparer les réponses des différents systèmes sur un large spectre de scénario d'accident pour le réacteur.

Un minimum de 1.0% et 1.2% d'enrichissement en ^{235}U sont, respectivement, requis pour le candidat ferritique et austénitique. La structure nucléaire doublement semi-magique de $^{28}_{14}\text{Si}$ fait en sorte que les mêmes conditions de grappe peuvent être préservées avec un maintien d'un minimum de 3.4 mk de surcriticité moyenne, par rapport au Zircaloy, au long de tout le cycle d'opération. Les calculs de transport et de diffusion montrent une disparition du pic ^{239}Pu et un facteur de conversion en isotopes fertiles moins élevé pour les systèmes enrichis. L'excès de réactivité du cœur gainé avec SiC peut être balancé par l'ajout de 0.1 ppm de bore dans le modérateur. Cette augmentation est de 11 à 13 fois supérieure lorsque les systèmes ferritiques et austénitiques sont considérés. Au point le plus chaud du cœur, le durcissement du flux est évalué à 19.8%, 16.5% et 16.1% pour 310SS, APMT et FeCrAl. Ce durcissement induit une moyenne de 50% de plus de ^{135}Xe , 60% de plus d' ^{235}U et un contenu équivalent en ^{239}Pu à la fin du cycle. À mi-cycle, il réduit de 7.6% le taux de fission par neutrons thermiques dans les régions externes de la pastille. Le durcissement est aussi à l'origine d'une réduction de 245.8 kW du niveau de la puissance du canal. La puissance du canal SiC ne diffère que de 1.5 kW du CANDU-6 actuel. À chaque période du cycle, tous les systèmes montrent un même degré d'autoprotection spatiale. L'effet de l'insertion des barres de contrôle solides et liquides résulte en un même degré d'aplanissement du flux pour tous les cœurs étudiés. L'analyse de l'évolution de la puissance maximale de grappe et de canal confirme que toutes les opérations sont conformes aux limites d'exploitation du CANDU-6. Le rechargement de SiC, (FeCrAl, APMT) et 310SS débutent 8, 10 et 12 jours après la date prévue pour le rechargement du CANDU-6. SiC présente une économie de 256 grappes UOX sur une période de 300 jours d'opération. Seulement 1.0% d'enrichissement est nécessaire pour raccourcir la première transitoire dictée par l'état du combustible utilisé de plus d'un mois à moins d'une semaine. Une phase d'équilibre, pendant laquelle tous les paramètres globaux et locaux sont essentiellement stationnaires, est atteinte avec un excès supplémentaire minimal de 10 mk pour les systèmes ferritiques et austénitiques. L'économie de rechargement des cœurs ferritiques et austénitiques peut être améliorée si des fréquences

de rechargement inférieures à celle du Zircaloy sont adoptées. SiC adopte un comportement semblable au Zircaloy lors d'une perte totale des mécanismes de contrôle de réactivité, alors que les réponses ferritiques et austénitiques sont au moins de 2.8 mk au-dessous du Zircaloy. Toutes les réponses sont pratiquement équivalentes quant à une récupération instantanée ou progressive du système de régulation du réacteur. À mi-cycle, et dû à leurs faibles contenus en $^{239,241}\text{Pu}$, les systèmes ferritiques et austénitiques montrent une réduction du coefficient de température du caloporteur et du modérateur. L'effet de l'enrichissement en ^{235}U augmente les probabilités de fuite en résonance et résulte en un effet Doppler moins prononcé. Les pénalités neutroniques des systèmes ferritiques et austénitiques permettent des réductions respectives de 1.88 mk et de 2.31 mk dans le coefficient du vide du caloporteur.

ABSTRACT

Following the Japanese Fukushima Daiichi Units 1-3 station blackout accident (March, 11th 2011), nuclear fuel pin improvement has become a subject of intense concern in the United-States Congress. After receiving the US-Senate Appropriations Committee Report (SR:112-75), the US Department of Energy Office of Nuclear Energy (DOE-NE) has doubly recognized, in June 2012 and April 2015, the technical feasibility of the so-called “*accident tolerant fuel*” (ATF) concept. American, French and Japanese RD&D efforts have then been steadily deployed to enhance the fuel/cladding tolerance, with the DOE-NE intention of performing a lead test assembly or lead test rod irradiation in light water reactor by the end of 2022. Austenitic stainless steel (310SS), ferritic alloys (FeCrAl and APMT) and silicon carbide (SiC) form three conventional classes of candidates that offer more than one hundred times improvement in oxidation resistance in steam-H₂ environments above 1204 °C, reduce the core enthalpy, delay the cladding ballooning and burst point and act as a barrier to the oxygen transport at high pressure. The thermo-mechanical stability of these new pins in a light water environment, at low and high burnups, for steady and transient state, has just been made public by the US Fuel Cycle Research Development Advanced Fuels Campaign at the Oak Ridge Laboratory. The main objectif of this project consists in quantifying the neutron impact of the Zircaloy cladding replacement in the pressurized heavy water CANDU-6 (Canada Deuterium Uranium) reactor, under nominal operating conditions and anticipated accident conditions.

The observed ⁵⁶Fe and ⁵⁹Ni high thermal captures, respectively, in ferritic and austenitic alloys imply a shift in current Canadian policy and legacy towards a need for fuel enrichment. A ²³⁵U enrichment strategy is developed to achieve the CANLUB bundle burnup average criticality. Poison, actinides and fission products accumulation rates are compared and analyzed at each burnup step. A multigroup transport computations is used to quantify the sheaths’ absorption rates with respect to the UO₂ pellets. The neutron flux hardening is studied in the fuel, cladding and moderator, in the inner and the outer core regions at different periods preceding the scheduled refueling date. The effect of liquid zone controllers and adjusters insertion and removal on flux flattening is presented. The consequence of flux hardening on bundle and channel radial and axial power profiles is quantified. A refinement of fuel pellet’s radial discretization and a consideration of its inhomogeneity allowed a fine comparison of the spatial self-shielding. Increasing the coolant volume, the pellet volume and the helium gap volume are three fuel pin configurations proposed and examined, in both natural and optimized enrichment conditions, to diminish the cladding penalties and the en-

richment cost. To balance the fresh cores excess reactivity, a transport-diffusion calculation chain is called to evaluate the boron requirements. Throughout the cycle, the new systems' operation compliance is compared to the CANDU-6 operating license limits. To compensate the fuel burnup, an 8-bundle shift on-power refueling scheme based on the CANDU channel age model is implemented and tested for all systems under study. A complete loss of regulation control event is also simulated before and during the ^{239}Pu peak. The core dynamic response to an instantaneous and gradual recovery of reactivity regulation devices is followed every hour. By uniformly perturbing the core global and bundle local parameters, the new reactivity coefficients are determined and cores' responses are compared over a large spectrum of moderate and severe accident scenarios.

A minimum enrichment of 1.0% and 1.2% is required for ferritic and austenitic-based claddings. The doubly semi-magic $^{28}_{14}\text{Si}$ nuclear structure ensures that the current CANLUB bundle conditions can be preserved with an average increase of 3.4 mk in core reactivity. The transport and diffusion calculations show that enrichment eliminates ^{239}Pu peak, leading to a low breeding ratio and a faster core reactivity decline. To compensate the fresh fuel excess reactivity, only 0.1 ppm larger boron concentration than the actual CANDU-6 conditions is needed for SiC system. This increase is from 11 to 13 times higher, when iron and austenitic systems are considered. At the core hottest point, the thermal flux is found to be 19.8%, 16.5% and 16.1% lower in the 310SS, APMT and FeCrAl-cladded cores. This spectral hardening induces an average of 50% more ^{135}Xe , 60% more ^{235}U and equivalent ^{239}Pu content at the end of the cycle. At mid-cycle, it reduces by 7.6% the thermal neutrons production rate in the outer UO_2 pellet region. The spectral hardening also results in a 245.8 kW lower channel power. SiC and Zircaloy channel powers differ only by 1.5 kW. At each burnup step, all systems show the same spatial self-shielding degree. The adjusters and the liquid-zone controllers flux flattening capabilities remain the same for all systems. All operations are found in compliance with CANDU-6 operating license limits. The silicon-carbide, iron and austenitic refueling operations start from 8 to 12 days after the standard CANDU-6 scheduled refueling date. SiC allows a complete cycle operation with an economy of at least 256 fresh UOX bundles. Only 1% of ^{235}U enrichment makes it possible to shorten the reactivity decline period from more than one month to less than a week. An equilibrium core state, during which global core-average characteristics are essentially stationary, is reached with a further minimal excess reactivity of 10 mk for ferritic and austenitic systems. Iron and austenitic refueling economy can be improved if a refueling rate lower than that of Zircaloy is adopted. SiC and Zircaloy adopt a very similar response to a complete loss of regulation control event, while iron and austenitic cladded systems' responses are at least 2.8 mk lower than the current CANDU response. All systems respond in a similar way to the instantaneous or gradual

recovery of reactor regulating devices. At mid-cycle, due to lower relative concentrations of $^{239,241}\text{Pu}$ contents, coolant and moderator temperature reactivity coefficients are found lower in the ferritic and austenitic systems. The ^{235}U enrichment increases the resonance escape probability and results in a less pronounced Doppler effect. The ferritic and austenitic neutronic penalties allow a 1.88 mk and 2.31 mk respective reductions in the CANDU coolant void reactivity.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE	iii
REMERCIEMENTS	iv
RÉSUMÉ	v
ABSTRACT	viii
TABLE DES MATIÈRES	xi
LISTE DES TABLEAUX	xv
LISTE DES FIGURES	xvii
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS	xxiii
LISTE DES ANNEXES	xxvi
CHAPITRE 1 INTRODUCTION	1
1.1 Origines de la gaine au zirconium	1
1.2 Élément de combustible irradié	2
1.3 La notion de fusion de cœur	6
1.4 Politique d'évaluation du risque	9
1.5 Processus de dégradation de la gaine	10
1.6 Cadre du projet de recherche	14
1.6.1 Le concept de tolérance aux accidents	14
1.6.2 La faisabilité du projet	16
1.6.3 La piste d'investigation	18
1.7 Structure du document	19
CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE	21
2.1 Propriétés thermophysiques du crayon	22
2.2 Les solutions à base d'alumine	25
2.2.1 Performances spécifiques du candidat	25
2.2.2 Problématiques	30
2.3 Les solutions à base de silice	31

2.3.1	Performances spécifiques du candidat	32
2.3.2	Problématiques	35
2.4	Les solutions à base de chromine	38
2.4.1	Performances spécifiques du candidat	38
2.4.2	Problématiques	45
CHAPITRE 3 ORGANISATION DU MÉMOIRE ET COHÉRENCE DES ARTICLES		47
3.1	Évaluation du rendement neutronique pour la grappe à 37 crayons, synthèse de l'article : " <i>Neutronic analysis for accident tolerant cladding candidates in CANDU-6 reactors</i> "	48
3.2	Simulation neutronique de l'opération du cœur CANDU-6, synthèse de l'article : " <i>CANDU-6 operations simulations using accident tolerant cladding candidates</i> "	48
CHAPITRE 4 ARTICLE 1 : NEUTRONIC ANALYSIS FOR ACCIDENT TOLERANT CLADDING CANDIDATES IN CANDU-6 REACTORS		50
4.1	Abstract	50
4.2	Introduction	50
4.3	Methodology	52
4.3.1	CANDU-6 lattice modeling and parameters	52
4.3.2	Claddings parameters	54
4.3.3	Enrichment and geometry requirements	56
4.3.4	Simulation strategy	57
4.4	Results	58
4.4.1	Depletion k_{eff} results	58
4.4.2	Neutron spectrum	63
4.4.3	Radial profile study	64
4.4.4	Geometry optimization	66
4.4.5	Reactivity perturbations	68
4.4.5.1	Coolant temperature perturbations	69
4.4.5.2	Moderator temperature perturbations	70
4.4.5.3	Fuel temperature perturbations	70
4.4.5.4	Coolant density perturbations	70
4.4.5.5	Moderator density perturbations	71
4.4.5.6	Simultaneous perturbations in coolant temperature and density	71
4.4.5.7	Simultaneous perturbations in coolant density and fuel temperature	72

4.5	Conclusion	72
4.6	Acknowledgments	73
CHAPITRE 5 ARTICLE 2: CANDU-6 OPERATION SIMULATIONS USING ACCI-		
	DENT TOLERANT CLADDING CANDIDATES	79
5.1	Abstract	79
5.2	Introduction	80
5.3	Methodology	83
5.3.1	CANDU-6 cell review	85
5.3.2	CANDU-6 supercell model	86
5.3.3	CANDU-6 full core model	88
5.3.4	Core refueling sequence	91
5.4	Results	93
5.4.1	Fresh fuel k_{eff} depletion results	93
5.4.2	Required poison concentration	94
5.4.3	Power profiles	96
5.4.4	Thermal flux distribution	99
5.4.5	Core refueling	101
5.4.6	Loss of regulation control event	103
5.4.7	Reactivity perturbations	105
5.4.7.1	Coolant temperature perturbations	106
5.4.7.2	Moderator temperature perturbations	106
5.4.7.3	Fuel temperature perturbations	107
5.4.7.4	Coolant density perturbations	107
5.4.7.5	Moderator density perturbations	108
5.5	Conclusion	112
CHAPITRE 6 DISCUSSION GÉNÉRALE		114
6.1	La stratégie d'enrichissement	114
6.2	Raffinement des conditions de discrétisation	115
6.3	Durcissement du flux neutronique	116
6.4	Taux de production neutronique	117
CHAPITRE 7 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS		119
7.1	Synthèse des travaux	119
7.2	Limitations de la solution proposée et améliorations futures	122

RÉFÉRENCES	124
ANNEXES	148

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1	Propriétés thermophysiques désirées dans le crayon de combustible lors d’une opération normale (NO), d’une perte du caloporteur (LOCA), d’une rampe de puissance (PR), d’un accident par insertion de réactivité (RIA) ou d’un <i>black-out</i> de la centrale (SBO) (Terrani, 2018). . .	25
Tableau 2.2	Composition isotopique (wt.%) des matériaux ferritiques.	26
Tableau 2.3	Composition isotopique des matériaux austénitiques.	38
Table 4.1	CANDU-6 cell parameters for [UO ₂ -Zr] fuel.	53
Table 4.2	CANDU-6 clusters geometry properties.	54
Table 4.3	Isotopic compositions (wt.%) of candidate claddings materials.	54
Table 4.4	Various fuel pin configurations used for reactivity improvement.	57
Table 4.5	Cycle converged mean multiplication factor.	60
Table 4.6	Time average fuel absorption rate divided by cladding absorption rate for slow, epithermal and fast neutrons.	62
Table 4.7	k_{eff} at BOC and time-averaged k_{eff} for Case (\mathcal{C}_0) fuel pin configuration (optimized enrichment and reference geometry configuration).	68
Table 4.8	k_{eff} difference (initial and cycle average) with respect to the reference case (\mathcal{C}_0) for alternate fuel pin configurations (\mathcal{C}_1 to \mathcal{C}_6).	68
Table 4.9	Reactivity ρ [mk] at BOC following perturbations in coolant (ΔT_c), moderator (ΔT_m) and fuel (ΔT_f) temperature.	75
Table 4.10	Reactivity ρ [mk] at BOC following volumetric mass density perturbations $\Delta\rho_v^c$ in coolant, $\Delta\rho_v^m$ in moderator, simultaneous perturbations ($\Delta T_c, \Delta\rho_v^c$) in coolant and ($\Delta T_f, \Delta\rho_v^c$) in both fuel and coolant.	76
Table 4.11	Reactivity ρ [mk] at MOC following perturbations in coolant (ΔT_c), moderator (ΔT_m) and fuel (ΔT_f) temperature.	77
Table 4.12	Reactivity ρ [mk] at MOC following volumetric mass density perturbations $\Delta\rho_v^c$ in coolant, $\Delta\rho_v^m$ in moderator, simultaneous perturbations ($\Delta T_c, \Delta\rho_v^c$) in coolant and ($\Delta T_f, \Delta\rho_v^c$) in both fuel and coolant.	78
Table 5.1	Candidate cladding material properties.	86
Table 5.2	Cycle converged mean multiplication factor.	87
Table 5.3	Core excess in reactivity at some selected periods.	93
Table 5.4	Required boron concentration at BOC.	94
Table 5.5	Refueling details for one-cycle CANDU-6 operation.	101
Tableau 6.1	Niveau d’enrichissement de la grappe en ²³⁵ U pour 4 stratégies étudiées.	114

Tableau 6.2	Durcissement du flux neutronique en [%] par rapport au Zircaloy-II à 0.025 eV.	116
Tableau 6.3	Ratios des taux de fission et durcissement du flux par rapport au Zircaloy, au 1 ^{er} jour, à l'extrémité de la pastille pour une condensation à trois groupes d'énergie.	118
Tableau A.1	Caractéristiques générales du réacteur CANDU-6.	148
Tableau A.2	Caractéristiques spécifiques du réacteur CANDU-6.	149
Tableau C.1	Facteur de multiplication effectif en fonction du temps t pour le critère d'enrichissement adopté (\bar{k}_{eff}) avec les conditions de tracking et de burnup (SPLITR 2, 1 MIX)	152
Tableau C.2	Facteur de multiplication effectif en fonction du temps t pour le critère d'enrichissement adopté (\bar{k}_{eff}) avec les conditions de tracking et de burnup (SPLITR 3, 1 MIX)	153
Tableau C.3	$ \Delta k_{\text{eff}} $ [pcm] en fonction du temps t pour la différence entre les conditions (SPLITR 3, 1 MIX) et (SPLITR 2, 1 MIX)	153
Tableau C.4	Facteur de multiplication effectif en fonction du temps t pour le critère d'enrichissement adopté (\bar{k}_{eff}) avec les conditions de tracking et de burnup (SPLITR 4, 1 MIX)	154
Tableau C.5	$ \Delta k_{\text{eff}} $ [pcm] en fonction du temps t pour la différence entre les conditions (SPLITR 4, 1 MIX) et (SPLITR 2, 1 MIX)	154
Tableau C.6	Facteur de multiplication effectif en fonction du temps t pour le critère d'enrichissement adopté (\bar{k}_{eff}) avec les conditions de tracking et de burnup (SPLITR 4, 4 MIX)	155
Tableau C.7	$ \Delta k_{\text{eff}} $ [pcm] en fonction du temps t pour la différence entre les conditions (SPLITR 4, 4 MIX) et (SPLITR 2, 1 MIX)	155
Tableau C.8	Facteur de multiplication effectif en fonction du temps t pour le critère d'enrichissement adopté (\bar{k}_{eff}) avec les conditions de tracking et de burnup (SPLITR 10, 4 MIX)	156
Tableau C.9	$ \Delta k_{\text{eff}} $ [pcm] en fonction du temps t pour la différence entre les conditions (SPLITR 10, 4 MIX) et (SPLITR 2, 1 MIX)	156

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1	(a). Structure d'un crayon de combustible neuf; (b). Structure d'une pastille UOX irradiée (Gieré et Stille, 2004; Burns <i>et al.</i> , 2012).	3
Figure 1.2	Micrographes d'une microscopie électronique à balayage par transmission (MEBT) montrant la densification d'une pastille. (a). Pastille UO ₂ non-irradiée : les porosités font partie de la structure interne de l'oxyde d'uranium; (b). Morphologie du même combustible avec un burnup de ~ 75 GWd/tHM (Rondinella et Wiss, 2010).	5
Figure 1.3	Céramographie d'une section transversale d'une pastille d'UO ₂ (burnup : ~ 65 GWd/tHM). (a). Régions internes du combustible où les points noirs correspondent à des défauts métallurgiques; (b). Zone de rim à l'interface pastille-gaine (Rondinella et Wiss, 2010).	6
Figure 1.4	Évolution de l'état de la gaine au cours d'un accident LOCA (Zinkle <i>et al.</i> , 2014).	11
Figure 1.5	Micrographe optique d'un spécimen d'une gaine Zircaloy-II, après une exposition de 2 h, à 1 MPa de vapeur d'eau, à 1200 °C (Terrani <i>et al.</i> , 2014c).	13
Figure 1.6	Évolution d'un crayon de combustible (UO ₂ /Zr) au cours d'un accident LOCA et SBO (Zinkle <i>et al.</i> , 2014).	15
Figure 1.7	(a). Changement de masse du spécimen après 8 heures d'exposition à 1200 °C; (b). Cinétique d'oxydation des matériaux (Ott <i>et al.</i> , 2014).	17
Figure 1.8	(a). Imagerie MEBT d'un combustible TRISO, non-irradié, avec un noyau de carbure d'uranium; (b). Imagerie optique d'une particule TRISO irradiée dans un réacteur AGR-1 dans une atmosphère à 1100 °C (Terrani <i>et al.</i> , 2012b).	18
Figure 2.1	Constante d'oxydation parabolique k_p vs. température d'exposition (Terrani, 2018) pour l'acier inoxydable conventionnel (Brassfield <i>et al.</i> , 1968), le Zircaloy-IV (Pawel <i>et al.</i> , 1979), le silicium-carbone (Terrani <i>et al.</i> , 2014a), l'alliage Kanthal APMT (de la famille fer-chrome-aluminum) et l'austénitique 310SS (Pint <i>et al.</i> , 2013, 2015).	22

Figure 2.2	Reconstruction par sonde atomique tomographique (microscopie à effet de champ) de la distribution spatiale des atomes de chrome dans une gaine (a). Fe-15 at.%Cr. non-irradiée ; (b). Fe-15 at.%Cr. irradiée à une fluence neutronique de $(1.1 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2)$, à une énergie ($E > 1 \text{ MeV}$) et une température de $(290 \pm 15^\circ\text{C})$ (Bachhav <i>et al.</i> , 2014).	26
Figure 2.3	Micrographies d'une microscopie électronique à balayage par transmission (MEBT) d'une exposition d'APMT à 1100°C pendant 168 h dans un environnement (a). ($\text{O}_2 + \text{N}_2$) et (b). ($\text{O}_2 + \text{N}_2 + \text{H}_2\text{O}$). Les deux couches oxydes ainsi que la matériau de base peuvent être distingués. La couche de platine a été déposée au cours de la préparation du spécimen pour l'examen MEBT. La ligne pointillée indique la séparation entre les deux couches (Hellström <i>et al.</i> , 2015).	28
Figure 2.4	Micrographies MEBT de l'exposition d'APMT à 1100°C pendant 168 h dans un environnement ($\text{O}_2 + \text{N}_2 + \text{H}_2\text{O}$) (Hellström <i>et al.</i> , 2015). . .	29
Figure 2.5	Micrographies d'une MEBT après 4 h d'exposition d'un spécimen CVD-SiC, à pression atmosphérique, à une température de (a). 1400°C , (b). 1500°C , (c-e). 1600°C et (f). 1700°C (Terrani <i>et al.</i> , 2014a).	34
Figure 2.6	Micrographies d'une MEBT après 8 h d'exposition d'un spécimen CVD-SiC, à 0.34 MPa , à une température de (a). 1200°C , (b). 1300°C et (c). 1350°C (Terrani <i>et al.</i> , 2014a).	36
Figure 2.7	Micrographies MEBT d'un alliage auténitique HR3C(25Cr-20Ni) exposé à la vapeur d'eau, à une pression de 1.7 MPa , pendant (a). 4000 h à 650°C , (b). 4000 h à 750°C et (c). 21 000 h à 552°C (Wright et Doolley, 2010).	40
Figure 2.8	Microscopie optique après 48 h d'exposition en milieu de vapeur, à 1200°C , à une pression de 340 kPa pour les alliages austénitiques (a). 310SS, (b). AL294C, (c). E-Brite et (d). AL6XN (Pint <i>et al.</i> , 2013). .	41
Figure 2.9	Microscopie MEBT et réflectométrie par rayons X de la couche chromine après 4 h d'exposition, à 1200°C , en milieu de vapeur de l'alliage austénitique E-BRITE (Pint et Unocic, 2017).	41
Figure 2.10	Couche chromine d'un alliage Fe-20at.%Cr exposée pendant 20 h, à une température de 1000°C , dans une atmosphère ($\text{O}_2 + 10\% \text{ H}_2\text{O}$) (Jianian <i>et al.</i> , 1997).	46

Figure 2.11	Micrographies MEBT de l'alliage 310SS après 168 h d'exposition à 600 °C dans une atmosphère (a). O ₂ , (b). O ₂ +40% H ₂ O : 200 ml/min (0.05 cm/s), (c). O ₂ +40% H ₂ O : 2000 ml/min (5.0 cm/s) et (d). agrandissement de (c) (Asteman et al., 2002).	46
Figure 4.1	Standard 37-element bundle cell.	53
Figure 4.2	Macroscopic capture cross section.	55
Figure 4.3	Effective multiplication factor vs. fuel residence time in a standard CANDU-6 natural cell lattice.	58
Figure 4.4	Effective multiplication factor vs. fuel residence time for various cladding candidates in a standard CANDU-6 cell lattice.	61
Figure 4.5	Δk_{eff} from Zircaloy-II vs. fuel residence time for various cladding candidates in a standard CANDU-6 cell lattice.	61
Figure 4.6	²³⁵ U (<i>left</i>) and ²³⁹ Pu (<i>right</i>) inventories during fuel depletion.	62
Figure 4.7	¹³⁵ Xe (<i>left</i>) and ¹⁰⁶ Ru (<i>right</i>) inventories during fuel depletion.	62
Figure 4.8	Neutron flux spectrum at MOC.	63
Figure 4.9	Thermal fission neutron production rate radial profile at MOC.	65
Figure 4.10	²³⁹ Pu radial profile at MOC (<i>left</i>) and EOC (<i>right</i>).	66
Figure 4.11	Test (1). Variation of k_{eff} with time for cells with optimized enrichment [Cases \mathcal{C}_0 and \mathcal{C}_1 from Table 4.4] (<i>left</i>) and with natural enrichment [\mathcal{C}_4 from Table 4.4] (<i>right</i>).	67
Figure 4.12	Various perturbations scenarios illustrated.	74
Figure 5.1	CANDU reactor pressure vessel: (1) <i>calandria</i> ; (2) <i>calandria main-shell</i> ; (3) <i>calandria tubesheet</i> ; (4) <i>calandria sub-shell</i> ; (5) <i>fuelling tubesheet</i> ; (6) <i>endshield lattice tube</i> ; (7) <i>fuel channel end fittings</i> ; (8) <i>feeders</i> ; (9) <i>calandria tubes</i> ; (10) <i>shield tank solid shielding</i> ; (11) <i>endshield steel ball shielding</i> ; (12) <i>manhole</i> ; (13) <i>pressure relief pipes</i> ; (14) <i>moderator inlet pipes</i> ; (15) <i>moderator outlet pipes</i> ; (16) <i>reactivity control unit nozzles</i> ; (17) <i>shutoff unit thimble</i> ; (18) <i>liquid zone control unit thimble</i> ; (19) <i>shield cooling system piping</i> ; (20) <i>shield tank</i> ; (21) <i>shield tank extension</i> ; (22) <i>rupture disc</i> ; (23) <i>moderator overflow pipe</i> ; (24) <i>pipe to moderator inlet header</i> ; (25) <i>inlet outlet strainer</i> . (Luxat, 2009)	84
Figure 5.2	CANDU 37-element bundle cell.	85
Figure 5.3	CANDU supercell model for reactivity devices.	88
Figure 5.4	CANDU reactor mesh along <i>xy</i> plans. <i>Red: fuel regions; Blue: reflector; Black line: calandria boundary; White: regions outside the core</i> (St-Aubin, 2013).	89

Figure 5.5	CANDU reactivity device configurations in the xz -plane (St-Aubin et Marleau, 2015a).	90
Figure 5.6	Core refueling sequence selected.	92
Figure 5.7	Effective multiplication factor vs. core full-power days for various cladding candidates.	95
Figure 5.8	Δk_{eff} from Zircaloy-II vs. core full-power days for various cladding candidates.	95
Figure 5.9	Thermal-group fission yield cross section (<i>left</i>) and thermal-group absorption cross section (<i>right</i>).	96
Figure 5.10	Maximum channel powers (<i>left</i>) and maximum bundle powers (<i>right</i>) vs. core full-power days.	96
Figure 5.11	Radial channel power distribution.	98
Figure 5.12	Bundle power distribution at 35 FPD for plane $z = 6$ as a function of horizontal distance x in row “H” (<i>left</i>) and vertical distance y in column “20” (<i>right</i>).	98
Figure 5.13	Thermal flux distribution at BOC at 598.305 cm height.	100
Figure 5.14	Thermal flux distribution at 35 FPD at 152.535 cm height.	100
Figure 5.15	Thermal flux distribution at 100 FPD at 276.360 cm height.	100
Figure 5.16	Reactivity vs. full-power days after refueling operations start.	102
Figure 5.17	Reactivity evolution after a loss of regulation control event initiated on day 1.	104
Figure 5.18	Reactivity evolution in the case of instantaneous recovery after 8 hours (<i>left</i>) and progressive recovery (<i>right</i>) of RRS devices.	105
Figure 5.19	Coolant temperature perturbations.	109
Figure 5.20	Moderator temperature perturbations.	109
Figure 5.21	Fuel temperature perturbations.	110
Figure 5.22	Coolant volumetric density perturbations.	111
Figure 5.23	Moderator volumetric density perturbations.	111
Figure B.1	Facteur de multiplication effectif vs. temps de résidence du combustible pour la grappe standard CANDU-6 pour un critère de même réactivité que le Zircaloy au BOC.	150
Figure B.2	Facteur de multiplication effectif vs. temps de résidence du combustible pour la grappe standard CANDU-6 pour un critère de même réactivité que le Zircaloy à son jour de basculement à sous-critique.	151

Figure B.3	Facteur de multiplication effectif vs. temps de résidence du combustible pour la grappe standard CANDU-6 pour un critère de même réactivité que le Zircaloy au EOC.	151
Figure D.1	Flux neutronique par unité de léthargie, au niveau du combustible, au 150 ^{ème} jour.	157
Figure D.2	Flux neutronique par unité de léthargie, au niveau du combustible, au 1 ^{er} jour.	158
Figure D.3	Flux neutronique par unité de léthargie, au niveau du combustible, au 300 ^{ème} jour.	158
Figure D.4	Flux neutronique par unité de léthargie au niveau du modérateur et de la gaine.	159
Figure E.1	Profil radial de la densité de puissance au 1 ^{er} jour.	160
Figure E.2	Profil radial de la densité de puissance au 150 ^{ème} jour.	161
Figure E.3	Profil radial de la densité de puissance au 300 ^{ème} jour.	161
Figure E.4	Taux de fission par neutrons thermiques au 1 ^{er} jour.	162
Figure E.5	Taux de fission par neutrons thermiques au 300 ^{ème} jour.	162
Figure E.6	Profil radial du taux de fission par neutrons épithermiques et rapides.	163
Figure G.1	Simulation d'un cas d'accident typique (perturbation de +300 K au niveau du combustible et perte totale du caloporteur) avec le module MCC: de DONJON5.	166
Figure G.2	Perturbations au niveau de la température du caloporteur (T_c) à différents pas de burnup.	167
Figure G.3	Perturbations au niveau de la température du modérateur (T_m) à différents pas de burnup.	168
Figure G.4	Perturbations au niveau de la température du combustible (T_f) à différents pas de burnup.	169
Figure G.5	Perturbations au niveau de la densité volumique du caloporteur (ρ_v^c) à différents pas de burnup.	170
Figure G.6	Perturbations simultanées au niveau de la température et de la densité volumique du caloporteur (T_c, ρ_v^c) à différents pas de burnup.	171
Figure G.7	Perturbations au niveau de la densité volumique du modérateur (ρ_v^m) à différents pas de burnup.	172
Figure H.1	Évolution de la réactivité du cœur suite à une perte totale des mécanismes de contrôle de réactivité au 20 ^{ème} jour.	173

Figure H.2	Évolution de la réactivité du cœur suite à une récupération instantanée des mécanismes de contrôle de réactivité après 8 heures de déroulement de l'accident.	174
Figure H.3	Évolution de la réactivité du cœur suite à une récupération progressive des mécanismes de contrôle de réactivité après 6 heures de déroulement de l'accident.	174

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

ADJ	Adjusters
AECL	Atomic Energy of Canada Limited
AGR	Advanced Gas-cooled Reactor
AOO	Anticipated Operational Occurrences
APMT	Advanced Powder Metallurgy Tube
ATF	Accident Tolerant Fuel
BDBA	Beyond Design Basis Accident
BOC	Beginning Of Cycle
BPN	Boron Poisoning Nozzles
BWR	Boiling Water Reactor
CANDU	Canada Deuterium Uranium
CNSC	Canadian Nuclear Safety Commission
CP	Collision Probability
CSAU	Code Scaling, Applicability, and Uncertainty
CVD	Chemical Vapor Deposition
CVI	Chemical Vapor Infiltration
DBA	Design Basis Accident
ÉACL	Énergie Atomique du Canada Limitée
EBR	Experimental Breeder Reactor
ECCS	Emergency Core Cooling System
EOC	End Of Cycle
ER	Éléments Réactifs
ESBWR	Economic Simplified Boiling Water Reactor
ESS	Emergency Shutdown System
FCM	Fully Ceramic Micro-encapsulated
FCRD	Fuel Cycle Research Development
FIMA	Fissions per Initial Mass Atom
FPD	Full-Power Days
HFD	Horizontal Flux Detectors
GPN	Gadolinium nitrate Poisoning Nozzles
HTGR	High-Temperature Gas-cooled Reactor
IAEA	International Atomic Energy Agency
IFEL	Irradiated Fuel Examination Laboratory

IPyC	Internal Pyrolytic Carbon
IST	Industry Standard Tool-set
JEFF	Joint Evaluated Fission and Fusion File
LLOCA	Large Loss-Of-Coolant Accident
LOCA	Loss-Of-Coolant Accident
LWR	Light Water Reactor
LZC	Liquid Zone Controllers
MCA	Mechanical Control Absorbers
MEBT	Microscopie Électronique à Balayage par Transmission
MIT	Massachusetts Institute of Technology
MOC	Middle Of Cycle
NITE	Nano-powder Infiltration and Transient Eutectoid
NO	Normal Operation
NPD	Nuclear Power Demonstration
NRX	National Research Experimental
ODS	Oxide Dispersion Strengthened alloys
OOA	Occurence Opérationnelle Anticipée
OPyC	Outer Pyrolytic Carbon
PCT	Peak Cladding Temperature
PHWR	Pressurized Heavy Water Reactor
PR	Power Ramp
PWR	Pressurized Water Reactor
RBMK	Reaktor Bolshoy Moshchnosti Kanalny
R/B	Release-to-Birth ratio
R&D	Recherche et Développement
RD&D	Recherche, Développement et Démonstration
RE	Reactive Elements
REB	Réacteur à Eau Bouillante
REP	Réacteur à Eau sous Pression
RIA	Reactivity Insertion Accident
RRS	Reactor Regulating System
SBO	Station Blackout
SLOCA	Small Loss-Of-Coolant Accident
SOR	Shutoff Rods
SRU	Système de Refroidissement d’Urgence
TRISO	Tristructural Isotopic Form

UOX	Uranium Oxyde
URSS	Union des Républiques Socialistes Soviétiques
US NRC	United States Nuclear Regulation Commission
VHTR	Very High Temperature Reactor
VFD	Vertical Flux Detectors
WIMD	Winfrith Improved Multigroup Scheme-D
ZEEP	Zero Energy research Experimental Pile

LISTE DES ANNEXES

Annexe A	CARACTÉRISTIQUES DU RÉACTEUR CANDU-6	148
Annexe B	RÉSULTATS DE QUELQUES AUTRES CRITÈRES D'ENRICHISSEMENT	150
Annexe C	EFFET DU RAFFINEMENT DES CONDITIONS DE DISCRÉTISATION RADIALE	152
Annexe D	DURCISSEMENT DU FLUX NEUTRONIQUE AU NIVEAU DE LA GRAPPE	157
Annexe E	PROFIL RADIAL DE LA DENSITÉ DE PUISSANCE ET DU TAUX DE FISSION	160
Annexe F	CONSIDÉRATIONS SUPPLÉMENTAIRES POUR L'EMPOISONNEMENT	164
Annexe G	PERTURBATIONS DES PROPRIÉTÉS LOCALES ET GLOBALES AU LONG DU CYCLE	165
Annexe H	SIMULATION D'UNE PERTE DES MÉCANISMES DE CONTRÔLE DE RÉACTIVITÉ AU 20 ^{ÈME} JOUR D'EXPLOITATION	173

CHAPITRE 1 INTRODUCTION

1.1 Origines de la gaine au zirconium

Dans un réacteur CANDU, la gaine du combustible nucléaire constitue la première barrière de sûreté servant à la rétention des éléments hautement radioactifs, suivie du tube de force, du tube de calandre, de la calandre et finalement de l'enceinte du réacteur. Les trois premières barrières citées contiennent au moins 97.5% de zirconium (^{91}Zr). L'utilisation du zirconium comme gaine de combustible prend son origine de la visite qu'effectuait l'Admiral Hayman G. Rickover, en Juin 1946, au Clinton Engineer Works (Oak Ridge, TN), quand il a décidé d'opter pour le zirconium comme gaine de combustible dans la conception du PWR-S1W¹, réacteur prototype pour la propulsion navale du sous-marin américain USS Nautilus (Rickover, 1975). Les seules spécifications techniques exigées à cette époque étaient que le métal devait être “*aussi pur que possible*” et “*aussi résistant que possible sans pour cela augmenter sa dureté métallurgique*” (Krishnan et Asundi, 1981). La décision Rickover fût par la suite supportée par Kaufmann (1948) au MIT et Pomerance (1948) à Oak Ridge qui réussissent à séparer 2% d'impureté de ^{178}Hf d'un spécimen de zirconium et à prouver que le zirconium, dans sa forme pure, a une excellente transparence neutronique. Au début des années 1950, doper le zirconium avec de l'acier inoxydable, un alliage nommé plus tard *Zircaloy-II*, résout le problème d'oxydation rapide du zirconium au-delà de 600 °C dans une atmosphère d'oxygène (Cubiciotti, 1950; Goldman, 1953). Au Canada, les défis uniques (Lewis, 1956) ayant accompagnés les expériences menées aux installations ZEEP (Zero Energy Research Experimental Pile) et NRX (National Research Experimental) ont montré que certains changements doivent être considérés si on désire opérer à haute pression et température (Chaplin, 2014). Remplacer la gaine d'aluminium par une au Zircaloy-II (Page, 1976), d'une part, et opter pour un tube de force à base de zirconium-niobium à la place d'une enceinte en aluminium (Rae, 1997), d'autre part, sont deux des trois changements majeurs introduits par Énergie Atomique du Canada Limitée (ÉACL), en Août 1955, au cours de la phase de conception du réacteur NPD-22MW (Nuclear Power Demonstration) (Hurst et Boyd, 1972; Chaplin, 2014). Due à son haut niveau de transparence neutronique (Pomerance, 1952), sa résistance à la corrosion en milieux aqueux (Goldman, 1953; Kass, 1954; Lustman et Kerze, 1955; Motta et al., 2015), son haut point de fusion (1852 °C), sa résistance mécanique (Ambartsumyan et al., 1959), son imperméabilité à l'accumulation des produits de fission et sa soudabilité à

1. “S” :pour plateforme sous-marine, “1” : pour première génération de cœur nucléaire conçu par le contracteur et “W” : pour désigner Westinghouse comme designer (Hewlett et Duncan, 1974).

l’expansion de la pastille d’uranium irradiée (Merckx, 1958), le Zircaloy fût par la suite, largement, adopté dans l’industrie nucléaire commerciale. Augmenter le burnup du combustible (Ledergerber *et al.*, 2010) et réduire le taux de fatigue de la gaine (IAEA, 1993; Garzarolli *et al.*, 1979) sont les principales causes du facteur de charge inégalé de 90%, réalisé par l’industrie nucléaire civile dans les années 1990 (Greenblatt *et al.*, 2017).

La performance de l’alliage Zircaloy n’a cessé d’être sujet d’amélioration. Terrani (2018) rapporte que la haute performance, en conditions nominales d’opérations, de la gaine de Zircaloy utilisée aujourd’hui, doit son mérite à une combinaison historique de la stratégie occidentale (additions de ^{56}Fe , ^{52}Cr , ^{119}Sn (Adamson, 2010)) et de l’orient russe (par l’addition du ^{93}Nb (Shishov, 2012)).

1.2 Élément de combustible irradié

Le matériau combustible le plus utilisé est le dioxyde d’uranium UO_2 (e.g. REP, REB, CANDU). Appelé aussi UOX (pour “*Uranium Oxyde*”), ce combustible se trouve dans un CANDU sous la forme d’une pastille cylindrique ayant un rayon de 6.032 mm et un rapport longueur sur diamètre de 1.32. Les pastilles sont empilées en série, l’une à la suite de l’autre, et sont insérées à l’intérieur d’un tube en alliage purifié de zirconium (Zircaloy-II² ou Zircaloy-IV³). Aux extrémités de chaque gaine, on trouve deux bouchons soudés. Entre la première pastille et le bouchon supérieur, un ressort assure le maintien du contact entre pastilles (voir Fig. 1.1a). Le crayon est rempli de gaz d’hélium (^4He). La particularité réside dans le fait que l’hélium ne s’active pas en présence de neutrons. Cette association de pastilles, entourée de la gaine, est maintenue dans une atmosphère pressurisée. Elle forme ainsi ce qu’on appelle l’élément de combustible. Les crayons sont ensuite assemblés en anneaux concentriques, en allant de 1 (au centre), 6, 12 à 18, pour former un total de 37 crayons et constituant ainsi la grappe standard de combustible. Douze grappes sont associées en série pour former ce qu’on appelle canal (une entité clé pour le rechargement et le contrôle de l’état du combustible). 380 canaux similaires sont disposés en rangées et en colonnes pour former le cœur du réacteur. Il importe de noter que, du point de vue de la grappe, les 37 crayons sont entourés du caloporteur, suivi du tube de force⁴, d’un espace rempli d’hélium, du tube de calandre et finalement du modérateur (D_2O).

Lorsque le combustible est extrait du réacteur, son activité est évaluée à 10^{17} becquerels par tonne-métrique, soit un million de fois son activité à l’instant de son insertion dans le

2. Zircaloy-II (Grade R60802) : Zr-1.5%Sn-0.15%Fe-0.1%Cr-0.05%Ni

3. Zircaloy-IV(Grade R60804) : Zr-1.5%Sn-0.20%Fe-0.1%Cr

4. Zr-2.5Nb (Grade R60904)

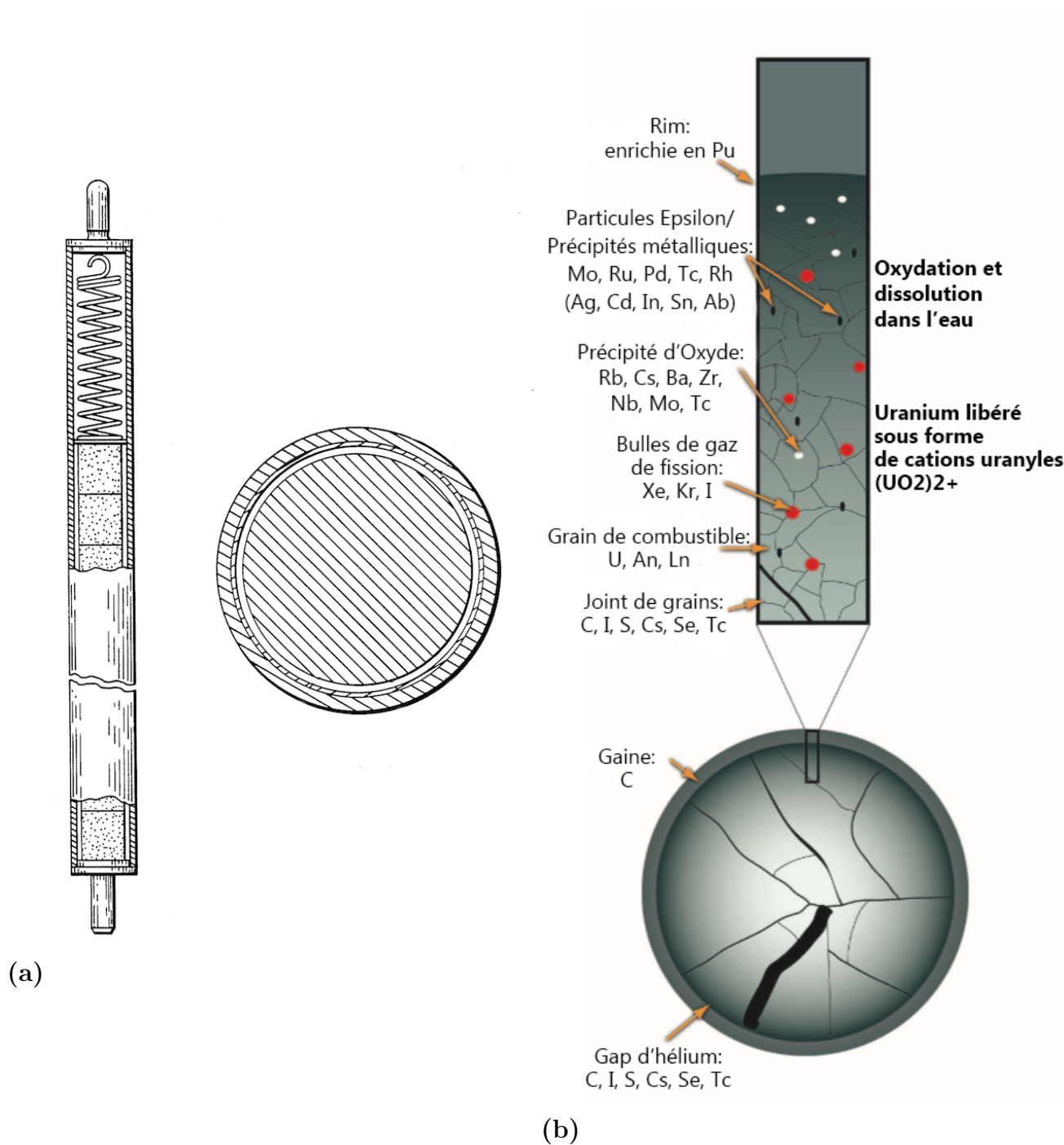


Figure 1.1 (a). Structure d'un crayon de combustible neuf; (b). Structure d'une pastille UOX irradiée (Gieré et Stille, 2004; Burns *et al.*, 2012).

cœur (Bruno et Ewing, 2006). Après une année de stockage dans une piscine d’entreposage, la dose efficace à 1 m d’un assemblage LWR typique est évaluée à 1 million de milliserverts (mSv) par heure, ce qui est équivalent à une dose létale humaine en moins d’une minute (Oversby, 1994). Les produits de fission à courtes durées de vie (e.g. ^{90}Sr , ^{131}I , ^{137}Cs , ^{140}Ba , ^{141}Ce , ^{144}Ce , ^{106}Ru) ainsi que les matériaux de structure activés (e.g. ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{95}Nb) sont à l’origine du rayonnement bêta, alors que les éléments transuraniens à plus longues durées de vie (^{237}Np , ^{239}Pu , ^{241}Am) sont responsables du rayonnement alpha (Lewis *et al.*, 2012). Hedin (1997), dans son rapport technique sur les risques du combustible irradié, cite qu’après 10,000 ans d’entreposage, l’activité de l’assemblage ne diffère que de 0.01% de son activité mesurée une année suivant son retrait du cœur. La Fig. 1.1b, montre une pastille UO_2 irradiée avec la distribution des radionucléides. Les craquements sont dus au fort gradient thermique entre le centre de la pastille (1200–2000 °C dépendamment de la puissance d’opération) et sa surface périphérique (en contact avec la gaine 400–500 °C). Les produits de fission gazeux (e.g. Kr, Xe, I) se trouvent dispersés sous formes de bulles à l’intérieur des granules uraniles ioniques ou en joint de gains (Childs, 1963), alors que les produits de fission métalliques (e.g. Mo, Ru, Pd, Tc, Rh) migrent et forment des précipités dans le grain ou dans le joint de grains (Bramman *et al.*, 1968; d’Annuncci *et al.*, 1977). Les autres produits de fission (e.g. Cs, Mo, Rb, Ba, Zr, Nb, Te, Sr) forment des précipités simples ou complexes⁵ (Kleykamp, 1985). Les lanthanides (La, Ce, Pr, Nd, Sm) ainsi que les produits dissous dans la matrice oxyde (Sr, Zr, Nb, Y, Pm) s’incorporent dans un site d’uranium de la matrice fluorine (Grimes et Catlow, 1991). Au sein de la pastille, les potentiels d’oxygène et de température dicteront le classement des produits de fission et leurs participations à plus d’un groupe, comme pour le césium ou le molybdène (Aronson *et al.*, 1957; Sari *et al.*, 1979). La forme chimique des produits de fission serait le plus influent sur leur cinétique et leur taux de relâchement hors de la gaine (Lassmann *et al.*, 1995). Les éléments transuranium se trouvent en phase solide à l’intérieur de la matrice. Dû à des raisons de non-unifomité de la combustion (autoprotection spatiale des résonances), le plutonium formé se concentre aux extrémités de la pastille (Burns *et al.*, 2012).

Sous l’effet de l’irradiation neutronique et des conditions thermo-mécaniques, un crayon UOX témoignera de six phases d’évolution (Gupta, 2008) :

1. Densification de la pastille. Au début de cycle, sous l’effet de l’irradiation, on observe une disparition totale des porosités⁶ de tailles inférieures à $2\text{ }\mu\text{m}$ (voir Fig. 1.2). L’énergie globale interne est donc redistribuée et la pastille est consolidée sous l’effet de sa chaleur interne (c.-à-d. frittage).

5. Les précipités sont complexes si le combustible a été exposé à des transitoires.

6. Lorsque fabriqué, une pastille UO_2 montre 5% de porosités (Freshley *et al.*, 1976).

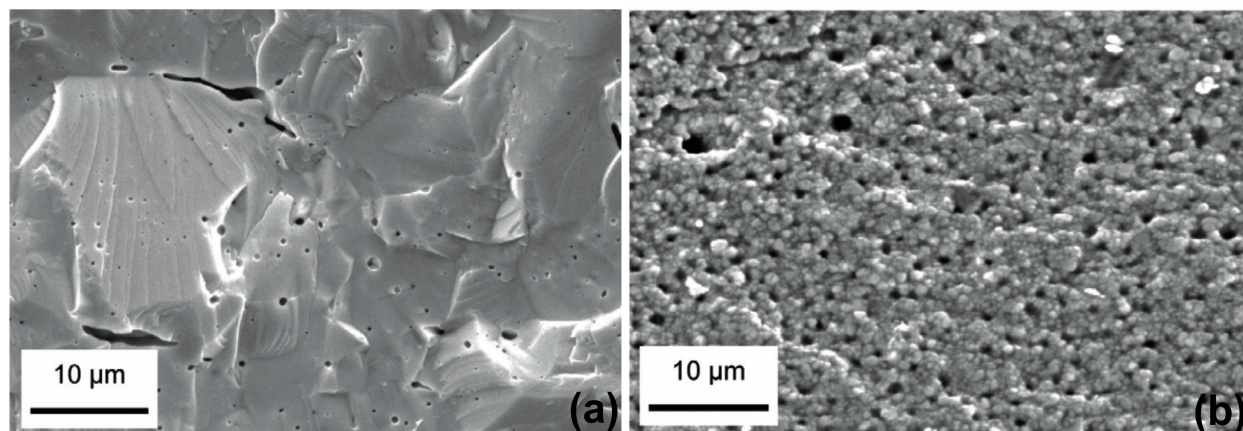


Figure 1.2 Micrographes d'une microscopie électronique à balayage par transmission (MEBT) montrant la densification d'une pastille. (a). Pastille UO_2 non-irradiée : les porosités font partie de la structure interne de l'oxyde d'uranium ; (b). Morphologie du même combustible avec un burnup de $\sim 75 \text{ GWd/tHM}$ ([Rondinella et Wiss, 2010](#)).

2. Diminution de la conductivité thermique. À mesure que les produits de fission gazeux s'accumulent, diffusent d'une granule uranile à une autre pour pénétrer l'espace hélium séparant la gaine de la pastille, la conductivité thermique de l'ensemble hélium-zirconium diminue.
3. Contraction de l'espace pastille-gaine. La faible conductivité⁷ de l' UO_2 est à l'origine de son haut gradient radial de température (quelques centaines de Kelvin/cm) ce qui donne au crayon son premier coefficient de dilatation thermique. Un gradient moins élevé existe entre la surface externe de la gaine (refroidie) et sa surface interne (non-refroidie). La pression des produits de fission (accumulés à la surface interne), d'une part, et celle qu'exerce la couche de zircon (ZrO₂) formée à la suite du contact avec l'eau du caloporteur (à la surface externe), d'autre part, entraînent un second coefficient de dilatation thermique. Conséquence directe de la différence entre ces deux coefficients de dilatation, une contraction de l'espace hélium est observée.
4. Fracturation de la pastille. Dues à l'inhomogénéité de la dilatation thermique au sein de la pastille, des zones de fortes contraintes se compétitionnent avec des zones oxydes à plus faibles tensions, et ce, dès la première transitoire de puissance. Des fracturations sont donc observées.
5. Gonflement de la pastille. L'accumulation des produits de fission gazeux sous forme de bulles (e.g. Kr, Xe) est à l'origine du gonflement de la pastille à forts taux de com-

7. Elle est évaluée à $0.02 \text{ W}/(\text{cm}^\circ\text{C})$ à 2000°C et $0.05 \text{ W}/(\text{cm}^\circ\text{C})$ à 2500°C ([IAEA, 1966](#)).

bustion⁸ (dû à l'évolution des bulles dans la matrice en fonction du burnup) alors que l'accumulation des produits de fission métalliques (e.g. Mo, Ru) est à l'origine du gonflement observé à faibles taux de combustion.

6. Dilatation de la gaine. La réponse à une forte pression à la surface interne de la gaine et une faible pression à sa surface externe refroidie est une dilatation de la gaine.
7. Interaction pastille-gaine. L'interaction pastille-gaine est un résultat irréversible du gonflement de la pastille (dû à l'accumulation des produits de fission) et de la contraction de l'espace d'hélium (due à l'existence de deux coefficients de dilatation thermique). La déformation d' UO_2 sera alors imposée à la gaine, ce qui induira sa rupture dans certains cas et une éventuelle contamination du circuit primaire.
8. Zone de rim. Cette zone serait créée par une forte densité de dislocations à la périphérie de la pastille, suivie par une cristallisation (voir Fig. 1.3) et une détérioration de la conductivité thermique comparativement au reste de la pastille.

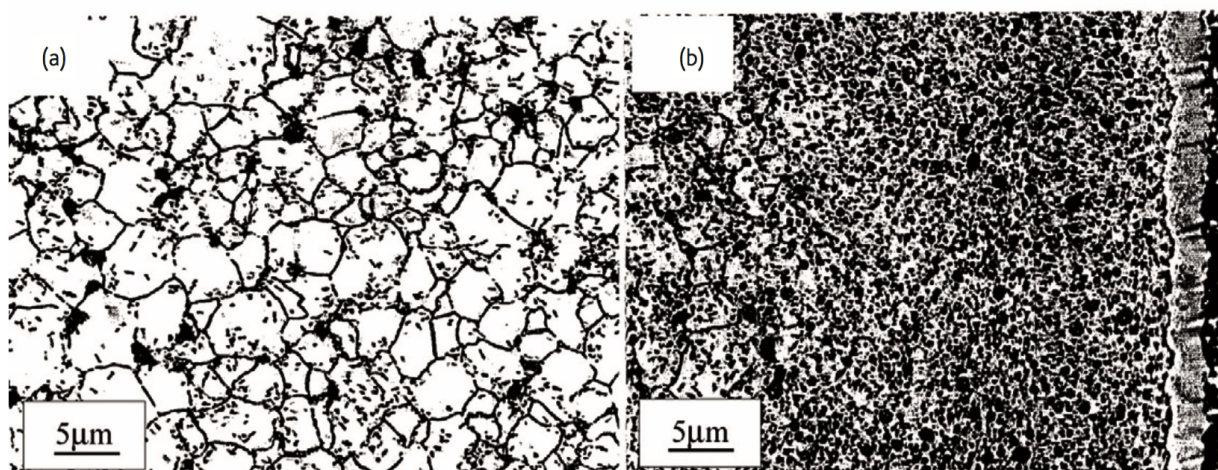


Figure 1.3 Céramographie d'une section transversale d'une pastille d' UO_2 (burnup : $\sim 65 \text{ GWd/tHM}$). (a). Régions internes du combustible où les points noirs correspondent à des défauts métallurgiques ; (b). Zone de rim à l'interface pastille-gaine ([Rondinella et Wiss, 2010](#)).

1.3 La notion de fusion de cœur

Un accident de type fusion de cœur, partielle ou totale, peut se produire lorsque les capacités de refroidissement sont perdues dans un réacteur en opération ou un réacteur récemment arrêté. Cela dit, même si la réaction en chaîne est arrêtée à la suite de l'insertion des mécanismes d'arrêt d'urgence (ou de régulation), la désintégration des produits de fission de

8. Par taux de combustion, on entend “*burnup*”.

courte durée de vie continue de générer une quantité importante d'énergie (l'équivalent de $\sim 7\%$ de la pleine puissance immédiatement après un arrêt, $\sim 1\%$ de la pleine puissance après 4h d'arrêt et $\sim 0.2\%$ de la pleine puissance après 10 jours d'arrêt (Glasstone et Sesonske, 2012; Zinkle *et al.*, 2014). Cette chaleur résiduelle doit être évacuée sinon elle entraînera une surchauffe de l'élément de combustible, une dégradation exothermique de l'assemblage et finalement une fusion du cœur. Il suffit que la chaleur produite dépasse la chaleur perdue pour un seul crayon de combustible pour que l'accident soit classé *de type fusion* (Burns *et al.*, 2012).

L'équation du transfert thermique par conduction sous sa forme la plus simple :

$$\nabla^2 T(\vec{r}, t) + \frac{\dot{q}'''}{k} = \frac{1}{\alpha} \frac{\partial T}{\partial t}(\vec{r}, t). \quad (1.1)$$

permet de cerner la dégradation de l'état du cœur lors de son exposition à des conditions sévères. Dans l'équation. 1.1, on a supposé que la conductivité thermique k [W/(mK)] est constante et on a noté par α [m²/s] la diffusivité⁹ thermique du combustible et par \dot{q}''' [W/m³] le taux de production de chaleur interne (ici réduit à la source de désintégration). En cas de perte du caloporteur, il y a une première accumulation de chaleur (\dot{q}'''). En faisant l'approximation de l'homogénéité de la gaine, on voit clairement une augmentation instantanée de la température comme réponse à cette accumulation. En premier lieu, une dégradation physique de la gaine se produit puis une forte dégradation chimique exothermique de celle-ci augmente exponentiellement la chaleur au sein du cœur (voir Section 1.5). On évalue que ~ 125 kg de zirconium entraîneront plus de 820 MJ de chaleur et plus de 2700 mol d'hydrogène (Powers et Meyer, 1980; Adamson, 2010). La vitesse à laquelle la température de la gaine augmente sera donc principalement gouvernée par le taux d'oxydation de Zr. Si aucun refroidissement n'est fourni, le point de fusion peut être atteint assez rapidement.

L'industrie nucléaire, militaire et commerciale, dénombre un total de 20 accidents de type fusion de cœur. Certains de ces accidents ont eu des retombées environnementales négligeables, d'autres présentent des rejets majeurs à effet étendu sur la santé et l'environnement. Burns *et al.* (2012) rapportent que ce dénombrement reste probablement incomplet à cause du peu d'informations concernant les événements qui ont pu se produire pendant la guerre froide. Les accidents de Three Mile Island (États-Unis, 28 mars 1979), de Tchernobyl (URSS, 26 avril 1986) et de Fukushima Daiichi (Japon, 11 mars 2011) sont ceux qui ont le plus marqué l'industrie nucléaire et la communauté internationale. Bien que le phénomène soit le même,

9. La diffusivité caractérise la capacité du matériau à transmettre un gradient de température (Birch, 1942; Carslaw et Jaeger, 1959) et elle est donnée par $\alpha = \frac{k}{\rho C_p}$, avec ρ [kg/m³] la masse volumique et C_p [J/(kgK)] la capacité thermique massique à pression constante de la gaine.

l'ampleur, l'état du combustible et l'impact sur la régulation nucléaire différent. À l'Unité-2 de Three Mile Island, un cumul de défaillances, commençant par une perte en alimentation en eau des générateurs de vapeur, un oubli de vannes en position fermée empêchant le système d'alimentation de secours d'atteindre les générateurs, suivi d'une accumulation de huit minutes de retard pour comprendre la situation augmentant la pression dans le cœur (déjà faiblement refroidi), un déclenchement de la vanne de décharge et la perte de celle-ci en position coincée, fût nécessaire pour engendrer une fusion partielle du cœur (Rogovin, 1980). Neuf heures et cinquante minutes plus-tard, une explosion localisée à l'hydrogène a eu lieu causant un pic de pression de 200 kPa (Corey, 1979). Il a fallu attendre quelques jours pour éliminer l'hypothèse d'une explosion totale à l'hydrogène (Gordon *et al.*, 1983) et 6 ans pour se renseigner sur l'état du combustible (Denning, 1985). 20 tonnes de combustible ont fondu, se sont mélangées avec les matériaux de structure et se sont précipitées au fond de la cuve, sans pour cela la traverser, pour former un magma appelé "*corium*" (Toth *et al.*, 1986). Contrairement à ce que l'enclencheur de confinement a pu éviter à Three Mile Island, une escalade incontrôlée de puissance au sein de l'unité 4 de la centrale de Tchernobyl a entraîné une hausse de la température, de multiples explosions, un rejet des barres de commandes, une destruction de la dalle couvrant le réacteur, une fusion totale du cœur et un rejet de 6 tonnes de matière radioactive à l'air libre (Ushakov *et al.*, 1996). 190 tonnes de combustible ont fusionné, se sont mélangées avec des matériaux de structure, du béton, du sable, de l'acier, du plomb et de l'acide borique et se sont précipitées au fond de la cuve pour former une matière appelée, aujourd'hui, "*lava*" (Burakov *et al.*, 1996).

Les unités 1, 2 et 3, de la centrale de Fukushima Daiichi, étaient en fonctionnement lorsque les premières secousses d'un séisme d'une magnitude 9.0, au large des côtes nord-est de l'île de Honshū, furent détectées. Bien que General Electric ait conçu les réacteurs pour répondre à un tremblement de terre d'une magnitude 8.0 et un tsunami de 5.7 mètres de haut, les 3 BWRs ont bien réagi et un arrêt immédiat a eu lieu. Cependant, six lignes d'alimentation électriques servant à alimenter le système de refroidissement d'urgence ont été détruites et perdues, chose qui a amené 12 groupes électrogènes, à moteurs Diesel, à prendre la relève et alimenter les pompes de refroidissement. 51 minutes plus tard, une vague d'une hauteur de 15 mètres inonde complètement la centrale, dégrade le système de prise d'eau de mer (donc perte de la source froide) puis engendre la perte des moteurs Diesel assurant le refroidissement des réacteurs 1 à 4¹⁰. Un dernier système, alimenté par des batteries électriques, a pris la relève pour faire circuler de l'eau contenu dans des tores, situés au pied des cuves des réacteurs, et assurer le refroidissement. Lorsque l'autonomie de ces batteries toucha à sa fin, toute

10. Le réacteur 4 était à l'arrêt pour des raisons de maintenance et de rechargement de cœur. Les réacteurs 5 à 6, situés à une dizaine de mètres plus haut, n'ont pas été atteints.

tentative de refroidissement s’est soldée par un échec. La centrale baigne de nouveau dans le noir ([Fukushima Nuclear Accident Independent Investigation Commission, 2012](#)). Des délais, respectivement, de 3, 77 et 40 heures étaient suffisants pour que les réacteurs 1, 2 et 3 fusionnent et pour que le corium commence à percer la cuve. Ces délais, comme on le verra dans ce qui suit, seront dictés par la morphologie de la gaine ([IAEA, 2015](#)).

1.4 Politique d’évaluation du risque

Le degré de compréhension et de maîtrise des concepteurs et des régulateurs des réacteurs nucléaires, à la fin des années 1960 et début 1970, est à l’origine du système de sûreté utilisé aujourd’hui dans la conception des centrales nucléaires ([Zinkle *et al.*, 2014](#)). Un tel degré de compréhension envisageait un certain nombre d’accidents postulés qu’on croyait remplir toutes les exigences en matière de sûreté et de sécurité. Le classement se fait alors en deux catégories d’une seule famille dite DBA (pour “*design basis accident*”); la perte de refroidissement LOCA (pour “*loss-of-coolant accident*”) et l’insertion de réactivité RIA (pour “*reactivity insertion accident*”) ([Cheng, 1980](#)). En utilisant une approche analytique déterministe, on admettait que la probabilité d’un scénario d’accident au-delà des limites DBA est pratiquement négligeable. Le système de refroidissement d’urgence (SRU) a donc été conçu pour répondre à ces deux types d’accidents dans les trois limites suivantes ([U.S. Atomic Energy Commission, 1973](#); [Johnston, 1977](#)) :

1. Un pic de température de gaine au-delà de 1204.45 °C doit être évité (oxydation exponentielle du zirconium à partir de cette température);
2. Une épaisseur d’oxydation au-delà de 0.17 fois l’épaisseur originale de la gaine doit être évitée (cumul excessif d’hydrogène);
3. Une quantité d’hydrogène supérieure à 0.01 fois la quantité totale générée si toutes les gaines avaient réagi chimiquement doit être évitée (cumul de nature explosive).

Au Canada, le travail sur le problème de l’hydrogène dans le zirconium a commencé depuis l’adoption du Zr-2.5Nb comme tube de force pendant la phase de conception du NPD ([Sawatzky et Ells, 2000](#)). Les premiers travaux sur la diffusion de l’hydrogène dans le Zircaloy-II se sont focalisés sur la gamme de 260 à 560 °C ([Sawatzky, 1960](#)), alors que la diffusivité axiale dans le Zr-2.5Nb couvrait la gamme de 200 à 700 °C ([Sawatzky *et al.*, 1982](#)). Pendant des années, les systèmes de refroidissement ont assuré la protection du crayon du combustible, tout en tolérant un pic de 1200 °C au sein de la gaine pour un délai en-dessous de 400 s ([Karoutas *et al.*, 2018](#)). La fusion partielle de l’unité-2 du Three Mile Island a démontré qu’un scénario BDBA (“*beyond design basis accident*”), au cours duquel cette température serait atteinte au niveau du zirconium pour plus de 400 s, peut se produire ([Rogovin, 1980](#)). [Zinkle](#)

et al. (2014) rapportent que cet incident a apporté deux changements quant à la politique d'évaluation du risque et à l'approche de l'implémentation du système de sûreté :

1. Le système est complexe et l'approche déterministe devrait être renforcée par une évaluation probabiliste des risques ;
2. Le concept du système de sûreté passif devrait prendre la relève et remplacer le système actif.

Le premier changement était facile à implémenter, alors que le second a posé certains défis : seulement quelques réacteurs¹¹ des plus de 80 en cours de conception ont tiré avantage d'un système de sûreté partiellement passif. Le SBO ("*station blackout*") survenu à Fukushima Daiichi a démontré, pour sa part, que le système de refroidissement d'urgence pourrait être perdu pour quelques jours (IAEA, 2015). Une oxydation exponentielle du zirconium dans un environnement sévère suivie d'une dégradation physique et chimique de l'assemblage, une accumulation d'hydrogène, une détonation, une explosion et une fusion totale du cœur est un scénario avéré crédible. Cet accident a re-souligné l'importance de l'adoption des systèmes passifs tout en bouleversant les hypothèses utilisées pour la quantification du risque opérationnel dans l'évaluation probabiliste des risques (Zinkle *et al.*, 2014). Toute l'attention s'est alors focalisée sur le processus de dégradation physique et chimique de la gaine au Zircaloy (Große *et al.*, 2012) et sur les alternatives pour une éventuelle mitigation (US Senate, 2011; Griffith, 2011).

1.5 Processus de dégradation de la gaine

La Fig. 1.4 montre une vue globale de l'évolution temporelle de la température de la gaine au zirconium (ainsi que de la gaine résistante) au cours de la progression d'un LOCA. Pour la gaine au zirconium, trois phases peuvent être distinguées :

1. Phase initiale ([300, 800[°C]) : Il y a dépressurisation du cœur. La réaction en chaîne est arrêtée, la première hausse de température observée est due à une redistribution d'énergie au sein de la pastille puis l'effet associé à la chaleur de désintégration l'emporte. À mesure que l'accident progresse, la hausse du gradient de température dans l'espace d'hélium, peuplé par les produits de fission gazeux (Kr, Xe, I), augmente la pression sur la surface interne de la gaine. Une première déformation plastique et un fluage de la gaine seront observés à¹² 746.9 °C (Erbacher et Leistikow, 1987). Le zirconium, étant anisotrope (en phase cristalline hexagonale α), répondra à l'augmentation du diamètre de la gaine par un rétrécissement axial, ce qui affecte sa ductilité. Due à

11. Westinghouse AP1000, GE-Hitachi ESBWR et les petits réacteurs modulaires.

12. Dépendamment de la pression exercée.

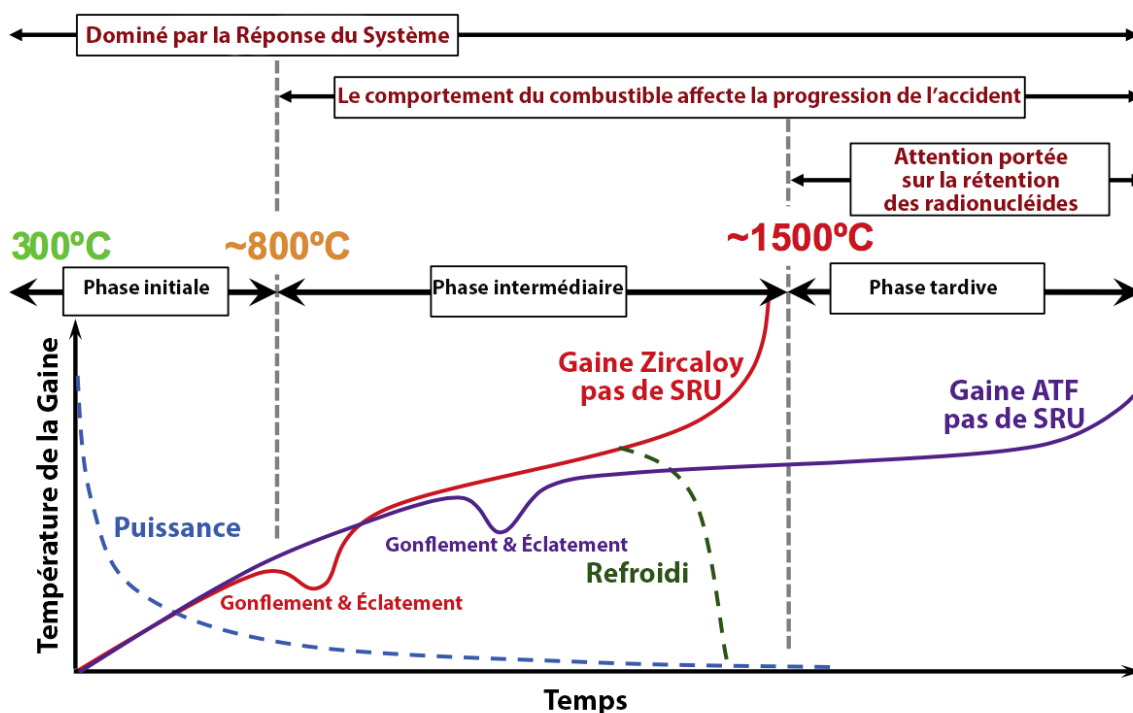
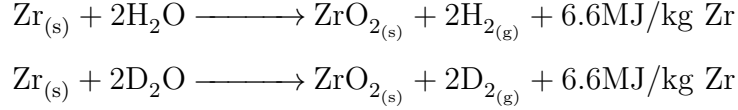


Figure 1.4 Évolution de l'état de la gaine au cours d'un accident LOCA (Zinkle *et al.*, 2014).

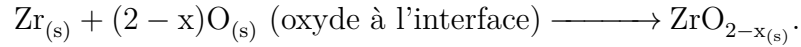
la bonne¹³ conductivité du zirconium ($21.5 \text{ W}/(\text{mK})$), l'accumulation de chaleur fera bouillir le caloporteur. Due à l'isolation thermique des grappes, la température augmentera aux deux surfaces de la gaine (Pettersson *et al.*, 2009). Cette phase peut s'étendre sur quelques secondes dans le cas d'un LLOCA (*“large loss-of-coolant accident”*), ou quelques minutes dans le cas d'un SLOCA (*“small loss-of-coolant accident”*), ou encore quelques heures dans le cas d'un SBO (Zinkle *et al.*, 2014).

2. Phase intermédiaire ($[800, 1500[^\circ\text{C}]$) : À 810°C , le zirconium commence à observer une transformation de sa phase hexagonale α vers une phase cubique centrée β . Dû à la différence des limites de fluage entre les phases α et β , un gonflement aura lieu (Powers et Meyer, 1980) et peut se poursuivre jusqu'à 40% de son diamètre initial. Durant cette même période de transformation de phase, il y aura un début d'oxydation de la gaine (Sagat *et al.*, 1984). À haute température, la molécule d'eau (lourde ou légère) se décompose et le coefficient de diffusion d'oxygène dans la gaine contrôlera son taux d'oxydation :

13. Le jugement que la conductivité du zirconium soit bonne est relatif à celle de la pastille UOX et non à tout matériau. Il importe de noter que la conductivité du cuivre est de $\sim 401 \text{ W}/(\text{mK})$.



La décomposition du D_2O (ou de H_2O) a lieu sur la surface extérieure de la gaine par un dépôt d'oxygène (O) solide et une libération d'une molécule D_2 (ou H_2) à l'état gazeux. Sous l'effet de l'agitation thermique, des sauts atomiques d'oxygène se feront sur les défauts cristallins (de la pellicule d'oxyde) pour former un oxyde (O^{2-}) à l'interface du métal. La fraction O/Zr dépendra du débit du caloporteur (Olander, 1994). Au début, une réaction se produit avec le substrat métallique pour former l'oxyde sous-stoechiométrique ZrO_{2-x} à l'interface métal-oxyde (Lewis *et al.*, 2009) :



Un état d'équilibre se produit avec le métal α -Zr pour que l'oxygène devienne métallique et y atteigne sa solubilité finale (Urbanic et Heidrick, 1978). La seconde loi de Fick de la diffusion dictera par la suite le processus de diffusion de l'oxygène de l'interface métallique vers le réseau métallique massif de Zr (Sagat *et al.*, 1984). L'oxydation du Zircaloy est généralement modélisée par une loi de corrosion parabolique, stipulant que le changement de masse de Zr par unité de surface, w [kg/m^2], en fonction du temps est donnée par l'équation de relaxation d'Arrhenius :

$$w^2 = k_w t = k_{w0} \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) t. \quad (1.2)$$

T [K] étant la température, R [= 8.36 J/molK] la constante des gaz idéals, Q [J/mol] l'énergie dégagée par quantité de matière oxydée et k_{w0} ¹⁴ est un paramètre tabulé de la loi parabolique (Lewis *et al.*, 2009). Au-delà de 981.85 °C, trois couches seront observées (voir Fig. 1.5) : (i) une couche de zircone externe, (ii) une couche intermédiaire stabilisée α -Zr(O) et (iii) une couche interne de la phase transformée β -Zr (Iglesias *et al.*, 1985; Lewis *et al.*, 1993). À des températures supérieures à 1100 °C, la pression sur la gaine jouera un rôle central sur la vitesse d'oxydation (Pawel *et al.*, 1979; Cheng *et al.*, 2012). Les trois processus de diffusion d'oxygène, soit de la surface solide à l'interface oxyde-métal, de celle-ci vers l'interface métal, et finalement vers le réseau massif α -Zr, créeront, au long du trajet, des cavités, des porosités et des micro-craquelures (Olszewski, 2012), ce qui fragilise les propriétés mécaniques de la gaine et dégrade davantage sa stabilité pour la suite de l'accident.

14. De 1273 K au point de fusion : $Q = 190 \times 10^3 \text{ J/mol}$ et $k_{w0} = 3.33 \times 10^3 \text{ kg}^2 \text{ m}^{-4} \text{ s}^{-1}$ (Lewis *et al.*, 1993)

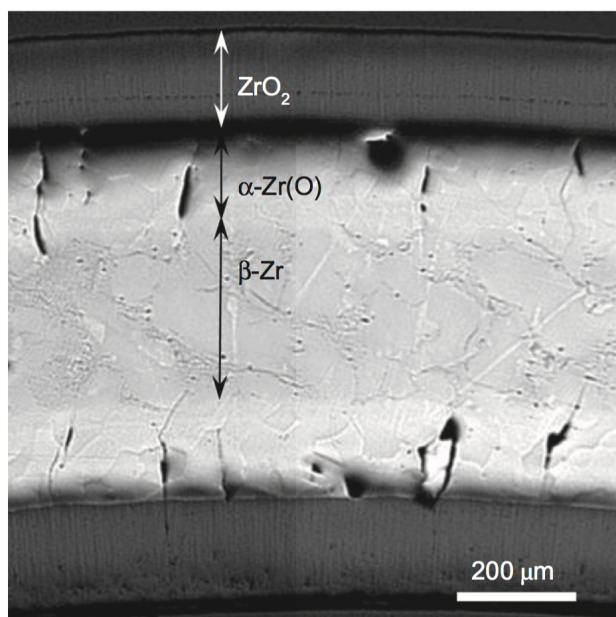


Figure 1.5 Micrographe optique d'un spécimen d'une gaine Zircaloy-II, après une exposition de 2 h, à 1 MPa de vapeur d'eau, à 1200 °C (Terrani *et al.*, 2014c).

Aux alentours de 1204.45 °C, une détérioration complète du cœur pourrait être évitée si le système de refroidissement d'urgence prend la relève¹⁵, sinon il y aura rupture de la gaine (Steinbrück *et al.*, 2010). Les produits de fission volatils sont, premièrement, relâchés et la contamination du circuit primaire est amorcée. À ce stade, l'oxydation de la gaine adoptera un comportement exponentiel et la vitesse sera proportionnelle au carré de la masse du zirconium disponible (20-60 tonnes). Il est généralement supposé que la solubilité d'hydrogène (ou du deutérium) dans le Zircaloy oxydé est pratiquement négligeable jusqu'à 2000 °C. La présence ou l'absence de la couche de zircone (ZrO_2) joue un rôle crucial quant à la quantité d'hydrogène qui sera absorbée par le métal. Les codes de simulations de LOCA (Allison *et al.*, 1985) supposent que la chaleur libérée par gramme d'atome d'oxygène absorbé vaut la moitié de l'enthalpie standard pour la production du zircone. Une épaisseur de 75 μm de zircone génère l'équivalent de 2 W/cm de chaleur (Pettersson *et al.*, 2009). Ayant dépassé 1204.45 °C, la chaleur d'oxydation devient comparable, et parfois supérieure, à la chaleur associée à la désintégration des produits de fission (Terrani *et al.*, 2014c). À 1299 °C, des interactions eutectiques se produisent entre le Zircaloy et l'acier inoxydable (couvrant les barres d'absorption insérées), ainsi que le Zircaloy et l'Inconel, utilisé comme espaceurs de grille (Hofmann, 1999). À 1446 °C, la fusion des matériaux de structure (acier inoxydable et Inconel)

15. Il s'agit d'un retour de la phase β à une phase α , moins riche en oxygène que la phase $\alpha\text{-Zr(O)}$.

se produit et à 1496 °C, il y a une interaction chimique forte entre l'UO₂ et la gaine (Hofmann *et al.*, 1989).

3. Phase finale (≥ 1500 °C) : Les dégradations sont de nature très sévère et l'attention sera portée sur la gestion de la fuite de la matière radioactive et le suivi de l'état de l'enclume du confinement du réacteur (Zinkle *et al.*, 2014). L'accumulation de l'hydrogène sera à l'origine d'une pressurisation du cœur, un contact avec l'oxygène de l'air et une ultime recombinaison explosive (Shapiro et Moffette, 1957). La couche stabilisée α -Zr(O) fond à 1971.9 °C¹⁶. L'interaction combustible/gaine résulte en une dissolution partielle de l'UO₂ avec la formation d'un immiscible métal fondu Zr-U-O, contenant des précipités céramiques (U,Zr)O_{2-x} à très haute teneur en oxygène. La couche de zircone fond à 2687 °C, alors que l'UO₂ fond à 2847 °C (Lewis *et al.*, 2009).

1.6 Cadre du projet de recherche

1.6.1 Le concept de tolérance aux accidents

À la suite de l'accident de Fukushima Daiichi, augmenter le niveau de tolérance du crayon de combustible UO₂/Zr est devenu un sujet brûlant dans les assemblées générales du Congrès des États-Unis. Dans le rapport (112-75) des attributions de crédits de l'année 2012, le Comité Sénatorial dresse, en Septembre 2011, trois recommandations (US Senate, 2011) à l'Office de l'Énergie Nucléaire du Département d'Énergie des États-Unis :

- “Donner la priorité au développement de combustibles et de gaines [...] pour améliorer la sûreté en cas d'accidents dans le bâtiment du réacteur ou dans la piscine du combustible usé.”
- “Urgence de mettre l'accent technique et les priorités de subventions sur les activités touchant au développement et à la qualification, à court terme, [aux matériaux] résistants à la fusion [de cœur], aux combustibles nucléaires tolérants aux accidents qui augmenteront la sûreté des générations présentes et futures des réacteurs à eau légère.”
- “Présenter au Comité Sénatorial, dans les 90 jours suivant la promulgation de ce rapport, son plan pour le développement de combustibles tolérants aux accidents, conduisant à des tests dans les réacteurs et des implémentations d'ici 2020.”

Par définition, les ATF's (“Accident Tolerant Fuels”) sont les combustibles et/ou les gaines, qui en comparaison avec le crayon actuel UO₂/Zr, peuvent tolérer une perte du système de refroidissement actif pour une période plus longue, tout en améliorant, ou au moins en maintenant, les performances neutronique et thermique du cœur en conditions nominales

16. Le Zircaloy-4 fond à 1756.9 °C.

d'opération (Ott *et al.*, 2014). Il importe de noter qu'aucun des systèmes ATF ne propose d'éliminer l'hypothèse d'une fusion de cœur, mais un ATF typique introduira une marge temporelle supplémentaire, au cours de laquelle les systèmes actifs et passifs pourraient être récupérés (Terrani, 2018), en retardant les dégradations chimique et physique du crayon, observées à la Fig. 1.6. Zinkle *et al.* (2014) retiennent que quatre fonctions doivent être

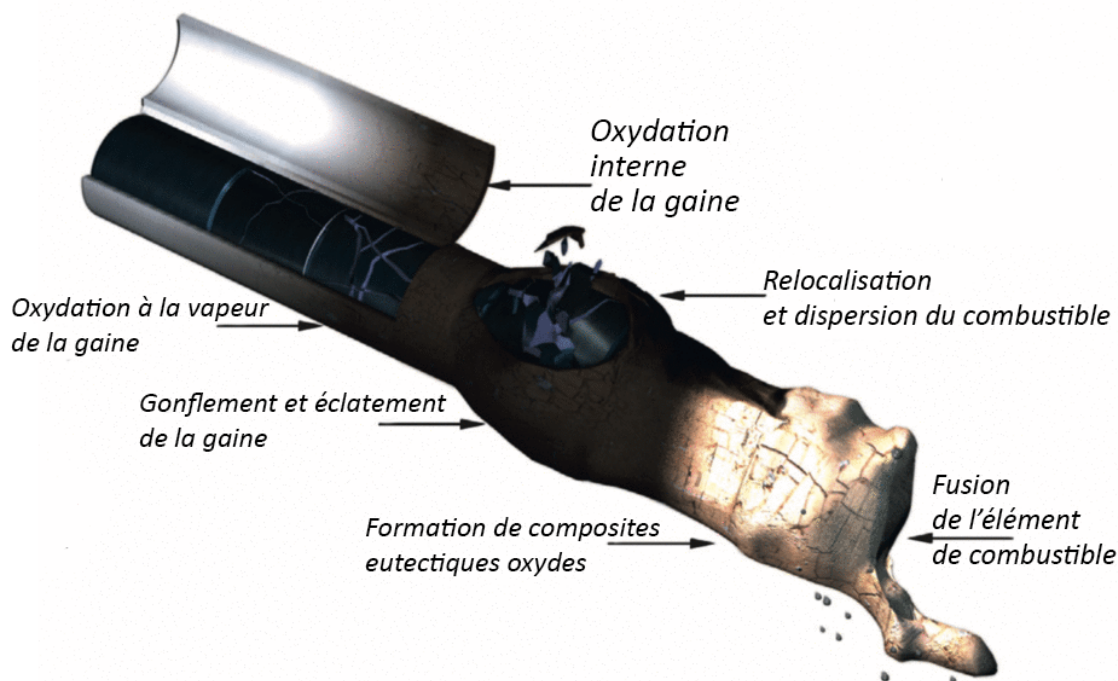


Figure 1.6 Évolution d'un crayon de combustible (UO_2/Zr) au cours d'un accident LOCA et SBO (Zinkle *et al.*, 2014).

remplies par le concept ATF :

1. Minimiser l'enthalpie du cœur. c.-à-d. réduire le taux d'oxydation de la gaine à moyenne et haute températures et réduire son exothermicité ;
2. Minimiser le taux de génération d'hydrogène. c.-à-d. réduire le taux d'oxydation de la gaine en milieu de vapeur et augmenter la séquestration de l'hydrogène, ainsi que sa transformation ;
3. Améliorer la stabilité de la gaine. c.-à-d. améliorer la ductilité de la gaine à haute température, retarder son fluage et son point d'éclatement, augmenter sa résistance au choc thermique ainsi que sa fragilité en milieu d'hydrogène et augmenter son point de fusion ;
4. Améliorer l'intégrité du crayon. c.-à-d. améliorer les capacités de rétention des produits de fission, minimiser leurs dispersions dans l'espace combustible-gaine, permettre des

opérations à plus basses températures et inhiber l'oxydation interne de la gaine.

En même temps, [Ott et al. \(2014\)](#) rapportent que la conception des ATFs sera assujettie aux cinq contraintes suivantes :

1. Rétrocompatibilité. Il y a plus de 400 réacteurs opérationnels, remplissant 13% des besoins mondiaux en électricité. Plusieurs programmes de recherche, dans divers pays, explorent la faisabilité technique, sécuritaire et financière d'augmenter leurs durées de vie pour un minimum de 20 ans d'opération supplémentaires ([World Nuclear Association, 2017](#)). Les ATFs doivent être compatibles avec le design courant et doivent être sans complication quant à l'implémentation à court-terme.
2. Économie. Les ATFs doivent remplacer les assemblages (ou les grappes) courant(e)s tout en entraînant peu de coûts à l'égard de l'enrichissement en ^{235}U , un même taux de rupture de gaines (ou moindre de préférence), un facteur d'utilisation semblable et en préservant (ou en simplifiant) les pratiques quand au rechargement du cœur et à la gestion du combustible.
3. Cycle du combustible. L'impact sur le cycle du combustible doit être minimal.
4. Conditions nominales. Les rendements neutronique et thermique du cœur doivent être préservés.
5. Sûreté. La nouvelle réponse du système, en cas d'accidents, doit couvrir tout le spectre BDA etbdba.

1.6.2 La faisabilité du projet

[Goldner \(2012\)](#), du FCRD ("*Fuel Cycle Research Development*") du Département d'Énergie des États-Unis, reconnaît la possibilité d'un programme de recherche, de développement et de démonstration (RD&D) des ATFs avec l'objectif de tests de crayons et d'assemblages dans les réacteurs commerciaux d'ici 2022. [Fechter et al. \(2013\)](#) rapportent que de nouvelles dispositions, incluant deux fours à hautes températures (un premier à 1700 °C, et un second à 1400 °C à 2 MPa, dans un environnement de vapeur et d'hydrogène), des installations d'analyse thermogravimétrique à 1500 °C et une installation de simulation LOCA à 1204 °C dans le même environnement, venaient d'être installées au laboratoire d'Oak Ridge. Ces installations visaient les tests de combustible non-irradié. Une année plus tard, des capacités semblables ont été introduites à l'IFEL ("*Irradiated Fuel Examination Laboratory*") d'Oak Ridge ([Ott et al., 2014](#)).

Entre 2012 et 2013, les résultats à Oak Ridge ont démontré qu'il existe trois approches possibles pour le concept ATF. La première consiste à introduire de légères modifications à la

gaine de Zircaloy de sorte à améliorer sa stabilité et à ralentir sa cinétique d'oxydation (Terrani *et al.*, 2013). La seconde consiste à considérer d'autres candidats, ne contenant pas de zirconium, avec de meilleures propriétés thermo-physiques et une meilleure cinétique d'oxydation au cours de la progression d'un SBO (Pint *et al.*, 2013). En particulier, les premières expériences ont montré que SiC (Terrani *et al.*, 2012a), FeCrAl (Pint, 2012) et 310SS (Pint *et al.*, 2013) sont trois matériaux qui montrent, respectivement, moins de 99.6%, 99.4% et 98.8% de changement de masse, lorsque comparés au Zircaloy, après 8 heures d'exposition à une température de 1200 °C (Fig. 1.7a) et une cinétique d'oxydation au moins deux fois moindre (Fig. 1.7b). La troisième consiste à considérer une toute nouvelle forme et géomé-

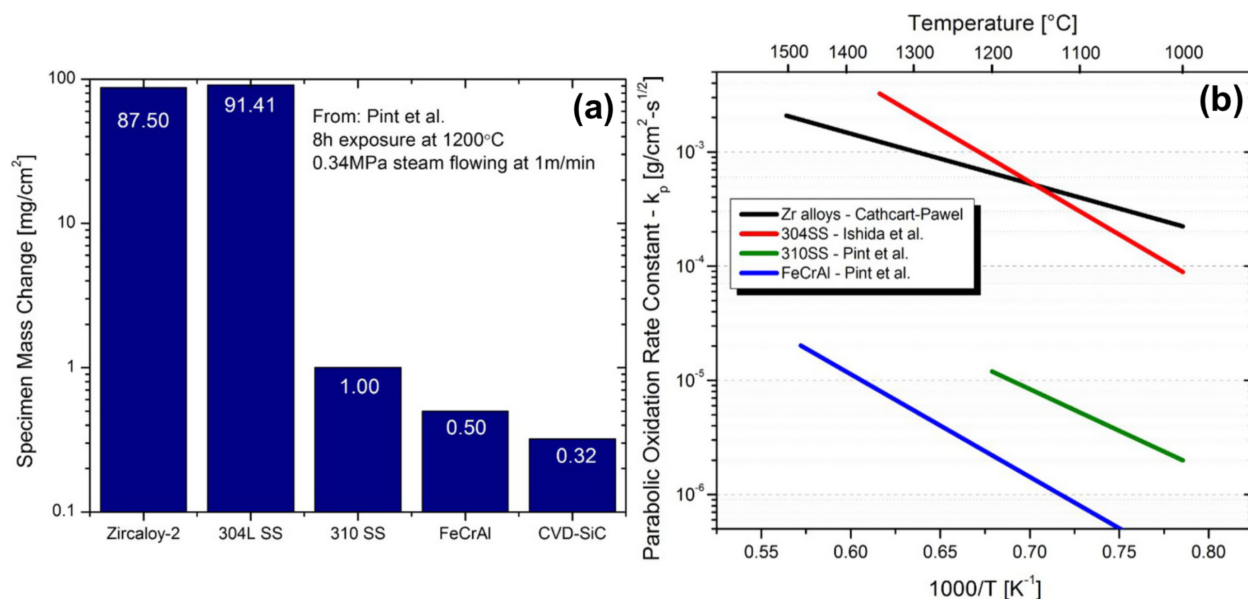


Figure 1.7 (a). Changement de masse du spécimen après 8 heures d'exposition à 1200 °C ; (b). Cinétique d'oxydation des matériaux (Ott *et al.*, 2014).

trie de combustible, et peut-être du crayon, soit une matrice FCM (“*Fully Ceramic Micro-encapsulated*”) avec des particules de forme TRISO (“*Tristructural Isotopic Form*”) (Terrani *et al.*, 2012b). Il s'agit d'une adaptation directe du combustible utilisé, et du savoir développé depuis 1947, pour les réacteurs à très hautes températures VHTR (“*Very High Temperature Reactor*”). La particule micro-encapsulée TRISO (voir Fig. 1.8a) consiste à protéger le noyau sphérique (soit le combustible), par un dépôt chimique sous-vide de couches-minces en phase vapeur (CVD), en commençant par une couche-*buffer* à base de carbone, suivie d'une couche interne de pyrocarbone (IPyC), une couche de carbure de silicium (SiC) et une dernière couche externe de pyrocarbone (OPyC). Au cours de l'irradiation, les couches IPyC et OPyC se rétractent et se déforment (fluage), alors que SiC ne subit que des déformations élastiques (Miller *et al.*, 2002). La forte pression des produits de fission cause une déformation de la couche IPyC, poussant ainsi SiC vers l'extérieur, alors que le rétrécissement de l'OPyC

l'amène à pousser vers l'intérieur de SiC et donc à contrer la première déformation. Une rupture de la particule ne se produit que dans le cas où la ténacité de SiC ($120 \text{ MPa m}^{1/2}$) est atteinte¹⁷ partout sur la couche (Powers et Wirth, 2010). La Fig. 1.8b, montre qu'à un burnup de 15% de FIMA¹⁸ (fissions par masse initiale atomique), la couche SiC demeure intacte, alors qu'il y a gonflement du noyau, un rétrécissement du buffer et une déconnection de la couche IPyC. Cette particule est connue pour sa haute performance à haute pression et température, ainsi que son très faible EOL ("End Of Life") ^{85}Kr R/B ("release-to-birth") ratio ($\sim 10^{-7}$) (Hanson, 2004).

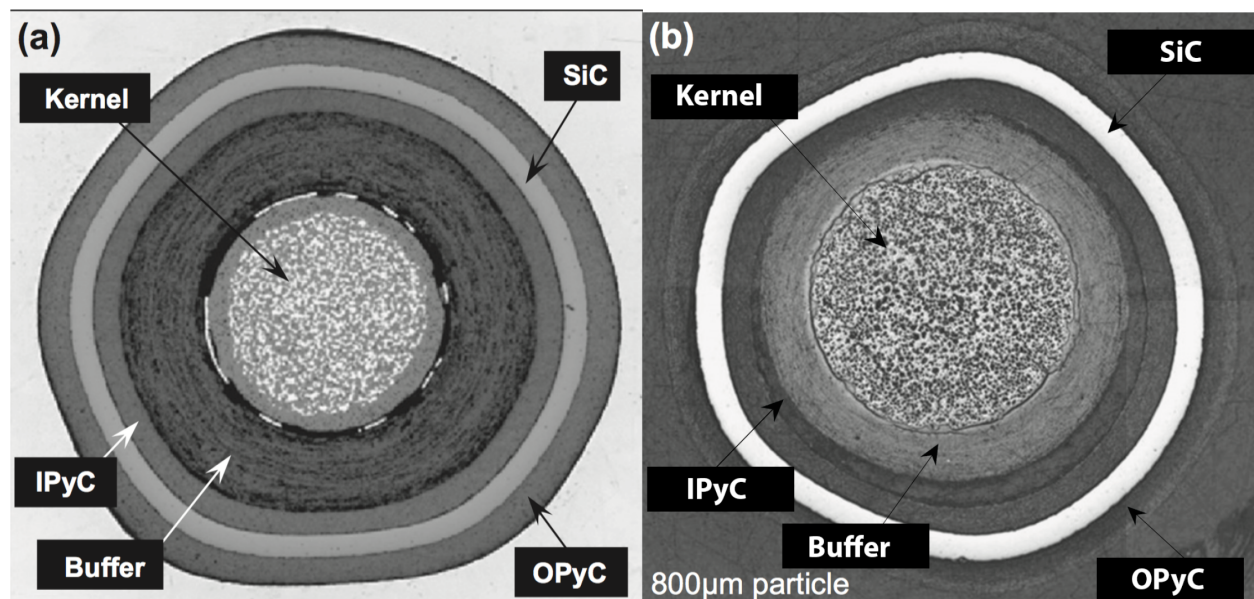


Figure 1.8 (a). Imagerie MEBT d'un combustible TRISO, non-irradié, avec un noyau de carbure d'uranium; (b). Imagerie optique d'une particule TRISO irradiée dans un réacteur AGR-1 dans une atmosphère à 1100°C (Terrani *et al.*, 2012b).

1.6.3 La piste d'investigation

60 ans de développement de zirconium suggèrent que n'importe quel changement introduit à la gaine (Thomas *et al.*, 1956; Videm, 1972; Subramanian *et al.*, 1991; Markelov *et al.*, 2018) ou encore au revêtement de cette gaine (Idarraga-Trujillo *et al.*, 2013; Van Nieuwenhove *et al.*, 2018; Yeom *et al.*, 2018) ne devrait pas s'accompagner d'améliorations spectaculaires dans le cas BDBA. Le fait que des tonnes de zirconium restent dans le cœur avec une possibilité d'exposition à 1200°C est l'impasse majeure de ces solutions. La troisième solution propose

17. La ténacité maximale du zirconium est évaluée à $8 \text{ MPa m}^{1/2}$

18. FIMA : "Fissions per Initial Mass Atom" (unités de taux de combustion dénombrant le pourcentage atomique ayant contribué à la fission nucléaire.)

de modifier le combustible, ce qui va à l'encontre des contraintes de rétrocompatibilité, de l'économie, du cycle du combustible et de l'implémentation à court-terme.

Dans ce projet de recherche, nous optons pour la deuxième solution pour un réacteur CANDU-6, soit l'augmentation de la tolérance de la grappe en éliminant la gaine au zirconium. Les objectifs de ce projet sont comme suit :

1. Choisir, parmi ceux que la littérature scientifique propose, les matériaux ayant les propriétés susceptibles de favoriser la résistance aux accidents de combustible nucléaire ;
2. Déterminer, à partir des simulations numériques, les niveaux d'enrichissement qui seront requis pour les réacteurs CANDUs et évaluer le temps moyen de résidence de ce combustible dans le cœur ;
3. Déterminer les besoins en poison neutronique ;
4. Évaluer les nouveaux coefficients de réactivité en fonction de la température du combustible et de la vidange du caloporteur ;
5. Comparer les performances neutroniques au Zircaloy en conditions nominales et DBA.

1.7 Structure du document

Ce mémoire comporte 7 chapitres et 8 annexes. Au chapitre 1, la décision du recours au zirconium dans le gainage du combustible nucléaire est mise dans son contexte historique. La notion de fusion du cœur est définie, la politique et le critère d'évaluation du risque nucléaire sont tracés, la performance du crayon irradié ainsi que le processus de dégradation de la gaine sont exposés. Le cadre de ce projet, sa faisabilité technique et ses objectifs sont également définis. Au chapitre 2, dans un premier temps, une analyse des propriétés thermophysiques du crayon est présentée en conditions nominales, DBAs et BDBAs. Dans un second temps, les performances et les enjeux de chaque famille de candidats, ayant répondu aux critères de tolérance aux scénarios BDBAs, sont discutés. Au chapitre 3, la cohérence de l'information véhiculée est justifiée. Au chapitre 4, le rendement neutronique de la grappe CANLUB à 37 crayons est présenté en conditions nominales, suivant certains schémas d'optimisation de la géométrie du combustible et suivant certains scénarios DBAs. Au chapitre 5, une simulation complète de l'opération du cœur est présentée lorsque le concept ATF est introduit au niveau de toutes les grappes. La performance du cœur CANDU-6 est analysée en conditions nominales, en condition de rechargement en opération, en cas de pertes des mécanismes de contrôle de réactivité et finalement sur un plus large spectre DBA que celui du chapitre 4. Au chapitre 6, certains critères et résultats supplémentaires, se rapportant à la stratégie de l'enrichissement, aux raffinements des conditions de “*tracking*” aux niveaux des crayons, au

durcissement de flux et à l'autoprotection spatiale des résonances, sont brièvement commentés. Au chapitre 7, une synthèse de l'ensemble des travaux est présentée. Les limites imposées par la morphologie de la couche oxyde, les moyens de compléter cette étude et les pistes pour raffiner certaines hypothèses, certains critères et choix de calculs sont aussi présentés.

CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE

Comme discuté au chapitre 1, les problématiques majeures de la gaine au zirconium se résument en (i) une oxydation exponentielle autocatalysée, (ii) une escalade de l'exothermicité d'oxydation (problème d'hydrogène) au delà de 1204.45 °C et (iii) une haute perméabilité au transport d'oxygène de la surface solide, vers la couche de zircone, aux interfaces oxyde-métal jusqu'au réseau métallique α -Zr. Les deux premiers enjeux complexifient le fardeau sur le SRU, alors que le troisième fragilise la ductilité de l'assemblage. Il a été aussi mentionné que le concept ATF n'élimine, en aucun cas, l'hypothèse d'une fusion du cœur, mais une marge temporelle sera donnée à l'opérateur en retardant la dégradation du cœur et en diminuant le fardeau sur le SRU. [Terrani \(2018\)](#) rapporte qu'en 2011, à la suite de l'accident de Fukushima, la communauté scientifique ne savait que répondre à la question s'il existe des matériaux avec une réduction drastique en cinétique d'oxydation, à haute pression et température? La raison est que très peu de technologies s'intéressent à la dégradation chimique des matériaux au-delà de 1200 °C dans une atmosphère à haute pression. Tout de suite aux États-Unis ([Goldner, 2012](#); [Carmack et al., 2013](#)), en France ([Strumpell, 2012](#); [Idarraga-Trujillo et al., 2013](#)), en Corée du Sud ([Park et al., 2012](#); [Kim et al., 2013a](#)) et au Japon ([Sakamoto et al., 2016, 2017](#)), des groupes de R&D se sont penchés sur cette question.

[Pint et al. \(2015\)](#) ont conclu qu'il existe trois classes conventionnelles de couches oxydes protectrices susceptibles de protéger le matériau en milieu d'hydrogène à haute pression et température, à savoir, la couche alumine (Al_2O_3), la couche chromine (Cr_2O_3) et la couche silice (SiO_2). Une cinétique d'oxydation au moins 100 fois moins prononcée (Fig. 2.1) implique moins de perméabilité à la diffusion ionique (car k_p est plus faible¹), moins de changement de masse (w^2) dans le réseau métallique de la gaine (voir Éq. 1.2), un faible taux de génération de chaleur par quantité de matière dégradée et une faible quantité d'hydrogène accumulée (conformément à la stœchiométrie d'oxydation).

1. La constante d'oxydation est directement proportionnelle à la diffusivité des espèces ioniques.

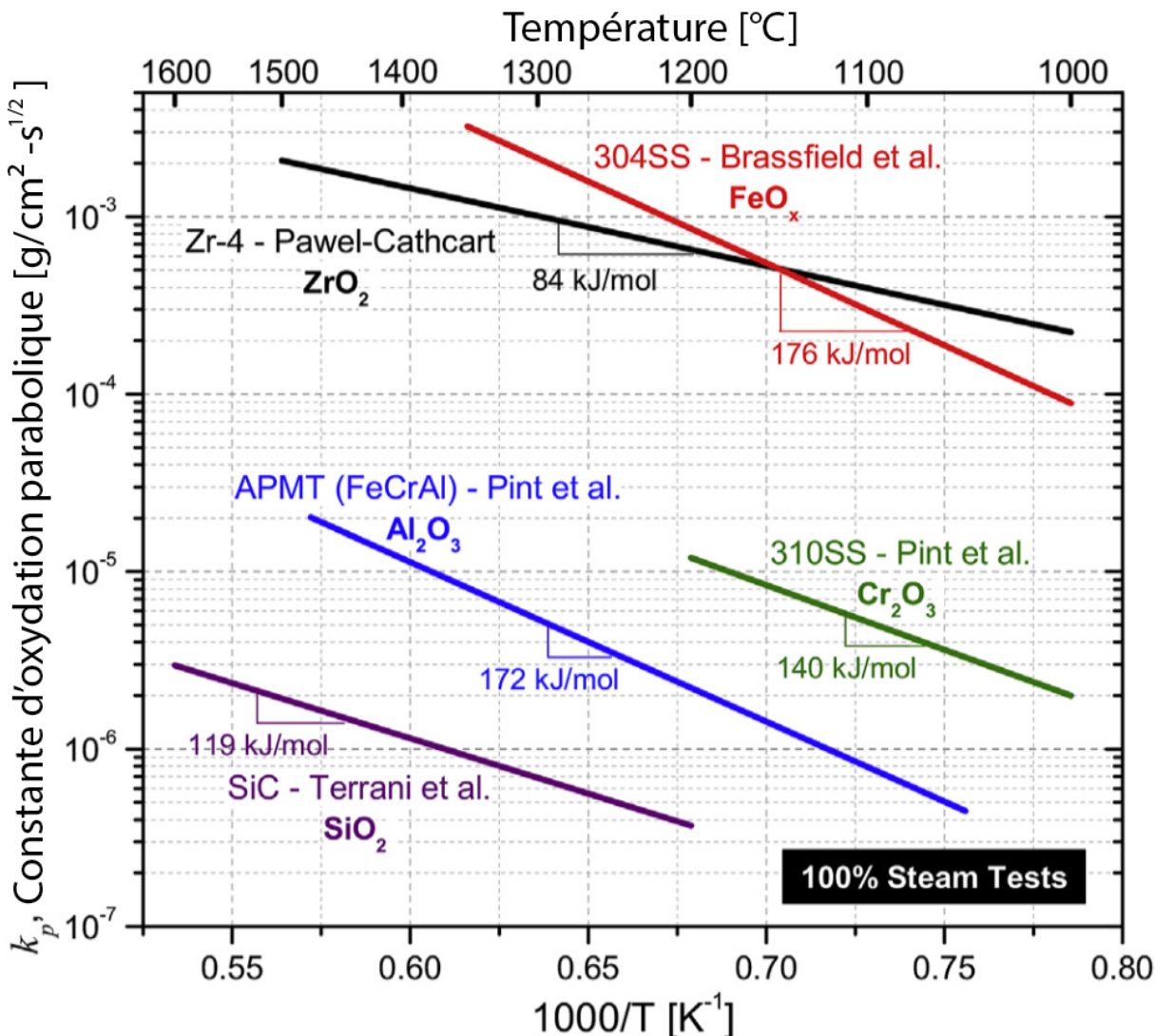


Figure 2.1 Constante d'oxydation parabolique k_p vs. température d'exposition (Terrani, 2018) pour l'acier inoxydable conventionnel (Brassfield *et al.*, 1968), le Zircaloy-IV (Pawel *et al.*, 1979), le silicium-carbone (Terrani *et al.*, 2014a), l'alliage Kanthal APMT (de la famille fer-chrome-aluminium) et l'austénitique 310SS (Pint *et al.*, 2013, 2015).

2.1 Propriétés thermophysiques du crayon

Terrani (2018) propose de déterminer ce qui est requis comme propriété thermophysique du crayon en analysant ² les phénomènes à éviter et ceux à solliciter lors d'une opération normale (NO), d'une perte du caloporteur (LOCA), d'une rampe de puissance (PR), d'un accident par insertion de réactivité (RIA) ou d'un *black-out* de la centrale (SBO).

2. Notez que la discussion qui s'en suit sera présentée et argumentée dans un contexte hypothétique.

- (a) **En conditions nominales.** Une *conductivité thermique*³ élevée est désirée, tant pour la pastille que pour la gaine, car elle permet de réduire le haut gradient radial de la température au sein de la pastille, de limiter son coefficient FCT (“*fuel centerline temperature*”) et de permettre une plus grande capacité de transfert de chaleur vers le caloporteur (Nuclear Energy Agency, 2012). Il a été également démontré (Olander, 1976) que, par son influence sur le profil de température dans le crayon, la conductivité thermique affecte l’état mécanique et thermodynamique de la pastille ainsi que la cinétique d’évolution du crayon dans un environnement à haut burnup (Lucuta *et al.*, 1996). Au niveau de la gaine, un *flux de chaleur critique* élevé est désiré car il permet de maintenir l’état de l’ébullition nucléée locale comme meilleur outil de transfert de chaleur (Todreas et Kazimi, 2012), c.-à-d. permettant aux bulles de vapeur formées de se recondenser lorsque la température du caloporteur est inférieure à celle de saturation (le cas des PWRs et PHWRs), sans formation de films de vapeur dégradant le transfert de chaleur et chauffant la gaine, ou de participer à la formation de vapeur nette (le cas des BWRs) (Ligou, 1997). Un *taux de fluage* adéquat, tant pour la pastille que pour la gaine, avec une bonne *résistance mécanique* de celle-ci, sans pour cela s’approcher de la zone du fluage tertiaire (Matsuo, 1987; Limbäck et Andersson, 1996) sont souhaités, car ils permettent une bonne réponse aux accumulations des contraintes liées à (i) la contraction de l’espace d’hélium, (ii) le gonflement du combustible et (iii) la dilatation de la gaine. Minimiser la *corrosion* pour la gaine est primordial (Cox, 2005) car il permet de réduire son taux de changement de masse ainsi que le cumul d’hydrogène. Il importe de noter qu’un pic dans le profil thermique de la *chaleur massique* (C_p) signifie un changement de phase du matériau (comme de la phase hexagonale α à la phase cubique β pour le Zircaloy), chose qui est à éviter pour une meilleure stabilité physique.
- (b) **En conditions LOCA.** La méthodologie CSAU (“*Code Scaling, Applicability, and Uncertainty*”), initiée en 1970 et approuvée en 1980 par le U.S.NRC (“*United States Nuclear Regulation Commission*”), a permis d’identifier et de trier, par ordre d’influence, les facteurs jouant un rôle central dans le degré de tolérance du cœur à un incident de type LLOCA (Boyack *et al.*, 1990). Basés sur cette méthodologie, Wilson *et al.* (1990) ont démontré que l’énergie stockée dans le crayon de combustible, qui est inversement proportionnelle à la conductivité du crayon, est un paramètre décisif quant au sort du réacteur dans de telles conditions. Terrani *et al.* (2014b) ont démontré, qu’à la suite d’une dépressurisation d’un PWR, il y a redistribution d’énergie au sein du crayon, ce

3. La conductivité thermique k [W/cm K] est la capacité du matériau à faire transférer un flux thermique à travers une surface donnée.

qui cause une première augmentation du PCT (“*Peak Cladding Temperature*”). Une haute énergie emmagasinée avec une faible conductivité thermique augmentent drastiquement le PCT dans les premières secondes de l’accident. Ce pic de température persistera dans le cœur jusqu’à ce que le SRU prenne la relève. Une haute conductivité thermique, tant pour la pastille que pour la gaine, sont désirés pour réduire la quantité d’énergie emmagasinée dans le matériau et ainsi le facteur PCT. Doubler la conductivité thermique dans la pastille permettrait de diminuer de 56 °C le facteur PCT, et de retarder ainsi le point d’éclatement de la gaine (Powers et Meyer, 1980). Une capacité thermique⁴ élevée implique une augmentation lente et faible de la température du matériau lors d’une transitoire (Ott *et al.*, 2014), chose qui est à prioriser. Retarder la dégradation de l’assemblage se fait par une réduction de l’oxydation de la gaine. Augmenter la résistance mécanique de la gaine permet de retarder son point de gonflement (810 °C) (Erbacher *et al.*, 1982).

- (c) **En conditions PR.** Au cours des transitoires PR, les commissions de réglementation ne permettent pas un début de fusion au centre du combustible (US Nuclear Regulatory Commission, 1978), donc la distribution de température limite la gamme de transitoires de puissance pouvant être testée. Augmenter la conductivité thermique du matériau est donc d’un grand intérêt lors de l’étude des scénarios PR ; une telle augmentation permettrait un meilleur aplanissement (“*flattening*”) du profil radial de la température (Charpenel *et al.*, 2000). Augmenter le taux de fluage de la pastille et diminuer son taux d’expansion thermique sont nécessaires pour minimiser l’interaction mécanique pastille-gaine. Du côté de la gaine, une haute résistance mécanique est à privilégier pour maintenir l’intégrité du crayon à la suite de la déformation de fluage observée au sein de la pastille.
- (d) **En conditions RIA.** Lors d’une perte du système de régulation, Nordheim (1946) et Fuchs (1946) ont montré que, contrairement au LOCA, une faible capacité thermique est à privilégier pour la pastille afin de favoriser l’effet Doppler dans le combustible comme moyen de ralentir la hausse de la réactivité. Un dépassement du point d’ébullition nucléée et une éventuelle formation de films de vapeur peuvent être évités par une gaine avec un plus haut flux de chaleur critique (Liu *et al.*, 2017). L’expansion thermique de la pastille devrait aussi rester aussi faible que possible pour ne pas engendrer des contractions de l’espace d’hélium (Sugiyama *et al.*, 2009).
- (e) **En conditions SBO.** Les dégradations chimique et physique de la gaine (Hofmann, 1999) doivent être retardées par une meilleure cinétique d’oxydation des matériaux au-delà de 1204.45 °C (Park et Ahn, 2012).

4. Il s’agit de l’énergie qu’il faut apporter au matériau pour augmenter d’un Kelvin sa température.

Le Tableau 2.1 résume, pour la pastille ainsi que pour la gaine, les propriétés à privilégier (\uparrow) et à éviter (\downarrow) pour chacune des conditions d’opération discutée.

Tableau 2.1 Propriétés thermophysiques désirées dans le crayon de combustible lors d’une opération normale (NO), d’une perte du caloporteur (LOCA), d’une rampe de puissance (PR), d’un accident par insertion de réactivité (RIA) ou d’un *black-out* de la centrale (SBO) (Terrani, 2018).

	Gaine					Pastille				
	NO	LOCA	PR	RIA	SBO	NO	LOCA	PR	RIA	SBO
Conductivité thermique	\uparrow	\uparrow	\uparrow	—	—	\uparrow	\uparrow	\uparrow	—	—
Capacité thermique	—	\uparrow	—	—	\uparrow	—	\uparrow	—	\downarrow	\uparrow
Taux d’oxydation	\downarrow	\downarrow	\downarrow	\downarrow	\downarrow	—	\downarrow	—	—	\downarrow
Coefficient d’expansion thermique	—	—	—	—	—	—	—	\downarrow	\downarrow	—
Taux de fluage	\uparrow	\downarrow	\uparrow	—	\downarrow	\uparrow	—	\uparrow	—	—
Résistance mécanique	\uparrow	\uparrow	\uparrow	\uparrow	\uparrow	—	—	\downarrow	\downarrow	—
Flux de chaleur critique	\uparrow	—	\uparrow	\uparrow	—	N/A				

2.2 Les solutions à base d’alumine

Les candidats ATFs, montrant une couche d’alumine protectrice, contiennent un minimum de 69.8% de ^{56}Fe (voir Tableau 2.2). L’adoption de gaine de combustible contenant un haut pourcentage ferritique revient à décembre 1951 quand le premier réacteur à neutrons rapides EBR-1 (“*Experimental Breeder Reactor*”), fonctionnant à base d’un combustible hautement enrichi en ^{235}U , refroidi par un alliage eutectique sodium-potassium et protégé par une gaine métallique, a réussi à illuminer 4 ampoules de 200 W (Waltar et Reynolds, 1981). Les alliages ferritiques, notamment FeCr, FeAl et FeCrAl, ont été premièrement proposés en 1962 (Weidenbaum *et al.*, 1962) et étudiés jusqu’à 1969 (General Electric Co., 1969) par la firme américaine General Electric comme étant des matériaux montrant une excellente cinétique d’oxydation à haute température. La solution n’a pas été formellement adoptée dû à l’engagement de l’industrie nucléaire américaine à la suite de la décision Rickover, aux différences dans le rendement neutronique, ainsi que le peu d’accidents majeurs impliquant le zirconium avant 1979. Aujourd’hui, de nombreux programmes aux États-Unis (Rebak *et al.*, 2017; Dryepondt *et al.*, 2018) ainsi qu’au Japon (Sakamoto *et al.*, 2017; Shibata *et al.*, 2018) considèrent la gaine FeCrAl comme étant un candidat ATF potentiel.

2.2.1 Performances spécifiques du candidat

Lors d’irradiation neutronique, les alliages ferritiques montrent, lorsqu’exposés à une gamme de température de l’ordre de 300–400 °C, une formation de précipités en phase α' (riche en

Tableau 2.2 Composition isotopique (wt.%) des matériaux ferritiques.

Material	ρ_v [g/cm ³]	⁵⁶ Fe	⁵² Cr	⁹¹ Zr	²⁸ Si	²⁷ Al	⁹⁶ Mo	¹⁷⁹ Hf
FeCrAl	7.10	75.0	20.0	-	-	5.0	-	-
APMT	7.30	69.79	21.60	0.10	0.53	4.9	2.92	0.16

⁵²Cr) à l'intérieur de la matrice ferritique en phase α (Grobner, 1973). L'accélération de la formation de ces précipités cause un changement dans la microstructure du matériau irradié (voir Fig. 2.2) et donc une fragilisation dès le début du cycle. Un lien morphologique a été détecté entre la possibilité de la formation de la phase α' et le degré d'enrichissement en chrome dans les composés binaires FeCr (Tissot *et al.*, 2016) et en chrome-aluminium dans les composés tertiaires FeCrAl (Edmondson *et al.*, 2016). Plusieurs études (Pint, 2017; Field *et al.*, 2017b) se sont alors focalisées sur les masses critiques de ⁵²Cr et ²⁷Al susceptibles d'éliminer la fragilisation causée par la phase α' et d'offrir une excellente cinétique d'oxydation jusqu'à 1500 °C. Une excellente résistance a été alors trouvée pour les composés FeCrAl avec des proportions en ⁵²Cr supérieures à 13 wt% et en ²⁷Al supérieures à 4 wt% (Unocic *et al.*, 2017). L'oxydation des alliages FeCrAl à des températures supérieures à 900 °C a montré une

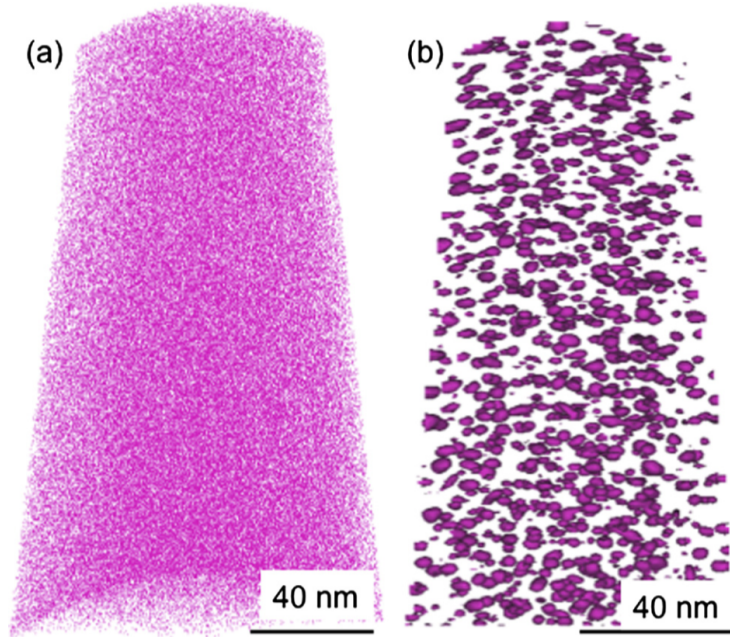


Figure 2.2 Reconstruction par sonde atomique tomographique (microscopie à effet de champ) de la distribution spatiale des atomes de chrome dans une gaine (a). Fe-15 at.%Cr. non-irradiée; (b). Fe-15 at.%Cr. irradiée à une fluence neutronique de $(1.1 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2)$, à une énergie ($E > 1 \text{ MeV}$) et une température de $(290 \pm 15^\circ \text{C})$ (Bachhav *et al.*, 2014).

lente cinétique d'oxydation avec une formation de deux couches aluminées $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ superposées protégeant le réseau métallique de base (Pint *et al.*, 2001; Maréchal *et al.*, 2003). Il a été également prouvé que l'addition de certains éléments réactifs (ER), e.g. ^{139}La , ^{179}Hf , ^{91}Zr et ^{89}Y , permet d'améliorer l'adhérence du matériau et l'intégrité des couches aluminées en diminuant leurs croissances sous le gradient d'oxygène (Pint, 1996, 2003). Les éléments ER ont une affinité à l'oxygène, comparable à celle de l'aluminium. Ils pénètrent alors la couche alumine sous une forme ionique (e.g. $^{139}\text{La}^{3+}$, $^{91}\text{Zr}^{4+}$, $^{89}\text{Y}^{3+}$), et à cause de leurs différences de taille ionique par rapport aux cations $^{27}\text{Al}^{3+}$, ils se séparent invariablement à la limite de grain de la couche protectrice. Étant donné que la croissance de la couche oxyde et sa détérioration dépendront du transport anionique et cationique, alors les inclusions ER, par leur invariabilité, contrôleront le taux et la direction de croissance $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Hou, 2011). À haute température, ces inclusions réfractaires peuvent se tasser et se dissoudre, empêchant une recristallisation du matériau et améliorant ainsi la stabilité mécanique de la gaine (Chevalier, 2014). L'alliage Kanthal APMT, à base de ^{56}Fe , ^{52}Cr et ^{27}Al , avec des inclusions de ^{91}Zr à 0.1%, de ^{96}Mo à 2.92% et de ^{179}Hf à 0.16%, permet d'atteindre ce point de stabilité. La Fig. 2.3 montre⁵ les micrographies d'une exposition d'un spécimen d'APMT à une température de 1100 °C, pendant 168 h, dans des environnements (O_2+N_2) et ($\text{O}_2+\text{N}_2+\text{H}_2\text{O}$). Dans les deux cas, on peut y distinguer les deux couches $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$. La couche supérieure s'est développée par une diffusion vers l'extérieur des cations, ce qui lui donne la morphologie de grains d'alumine équi-axés (avec 90%Al, 10%Fe), alors que la couche inférieure s'est développée par une diffusion vers l'intérieur des ions d'oxygène, ce qui lui attribue la morphologie des grains oxydes colonnaires. L'interface entre les deux couches correspond à la surface métallique d'origine, riche en ^{52}Cr et ^{56}Fe . La distribution et la morphologie des particules ER, ainsi que leur effet sur la croissance contrôlée de la couche d'oxyde, ne sont pas affectés par la présence de la vapeur d'eau. Le fait que ces particules soient plus concentrées dans la couche alumine inférieure montrent que leur inclusion a eu lieu à la suite de l'oxydation, à cause de la récession du métal. Le fait que certaines de ces particules soient observées dans la couche alumine supérieure (voir Fig. 2.4) est attribué à un problème de perte de matière par diffusion des ions ER dans les limites de grains. Le fait que certaines particules montrent “une tête arrondie” et d'autres “une queue nébuleuse allongée” est, probablement, dû à un échange de matière entre l'inclusion ER et l'alliage APMT à haute température, au fur et à mesure que la particule s'incorpore dans le matériau (Hellström *et al.*, 2015).

Un examen du niveau de changement de masse du spécimen d'APMT, lors de deux expositions séparées dans les environnements (O_2+N_2) et ($\text{O}_2+\text{N}_2+\text{H}_2\text{O}$), montrent que l'eau a

5. Notez qu'à mesure que l'on s'éloigne de l'alliage sur la Fig. 2.3, on s'éloigne également de l'intérieur de la gaine vers sa surface extérieure.

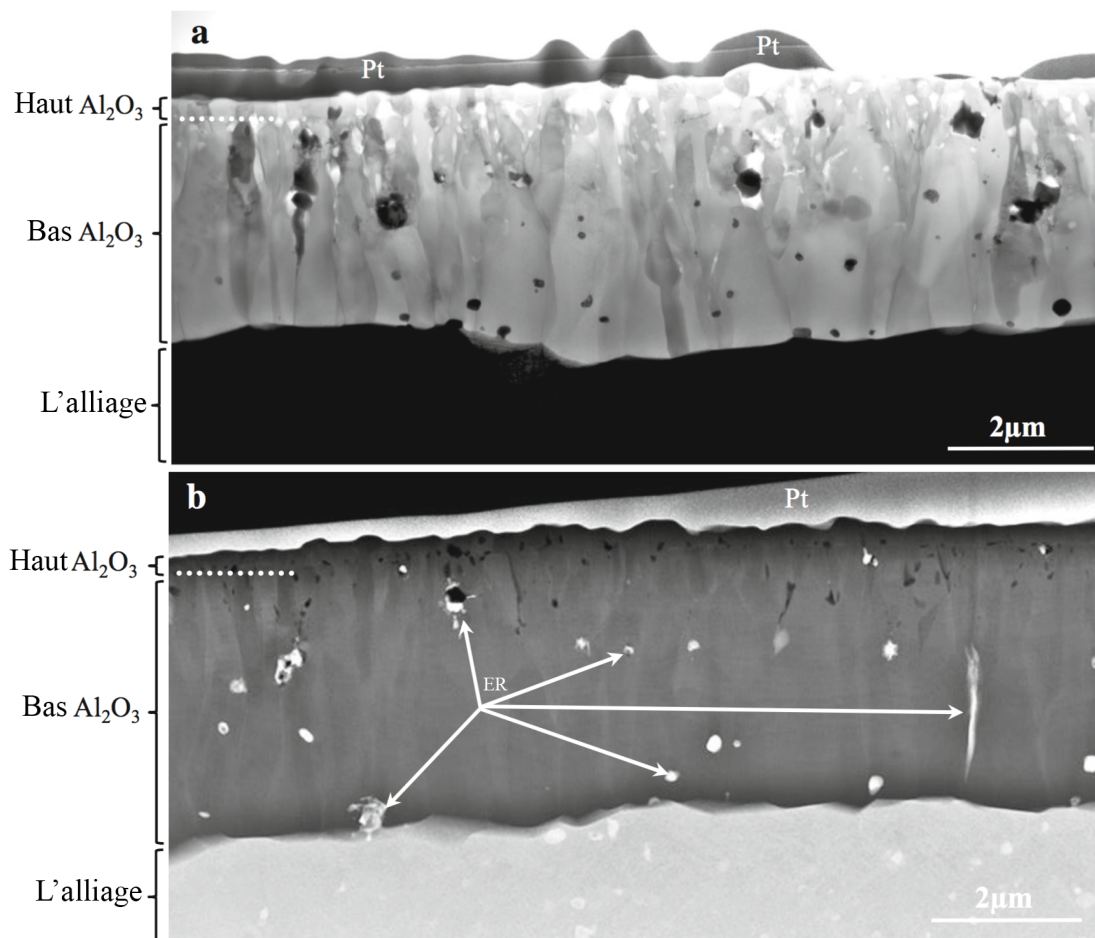


Figure 2.3 Micrographies d'une microscopie électronique à balayage par transmission (MEBT) d'une exposition d'APMT à 1100 °C pendant 168 h dans un environnement (a). (O_2+N_2) et (b). ($O_2+N_2+H_2O$). Les deux couches oxydes ainsi que la matériau de base peuvent être distingués. La couche de platine a été déposée au cours de la préparation du spécimen pour l'examen MEBT. La ligne pointillée indique la séparation entre les deux couches (Hellström *et al.*, 2015).

peu d'effet sur la cinétique d'oxydation des alliages FeCrAl (Hellström *et al.*, 2015). L'étude de ce matériau à des températures de 1200–1350 °C, et des pressions de 0.1–2 MPa, dans un environnement de vapeur de dihydrogène (H_2), a montré une même cinétique de formation de couches aluminées (Pint *et al.*, 2013). Pour contrer les pénalités neutroniques des alliages FeCrAl (Rivera et Meyer, 1980), il a été également montré que réduire l'épaisseur du spécimen à 130 μm et l'exposer à une température de 1200 °C produiront une couche $\alpha-Al_2O_3$ protectrice ayant une épaisseur de 1.5 mm (Pint *et al.*, 2013). Les travaux de Pint (2017) ont, quant à eux, montré que la couche alumine préserve une excellente cinétique d'oxydation jusqu'à 1475 °C, suivie d'une consommation totale du matériau après 4 h d'exposition, en milieu de vapeur à 1500 °C. La ductilité du matériau peut être améliorée et dépasser celle du

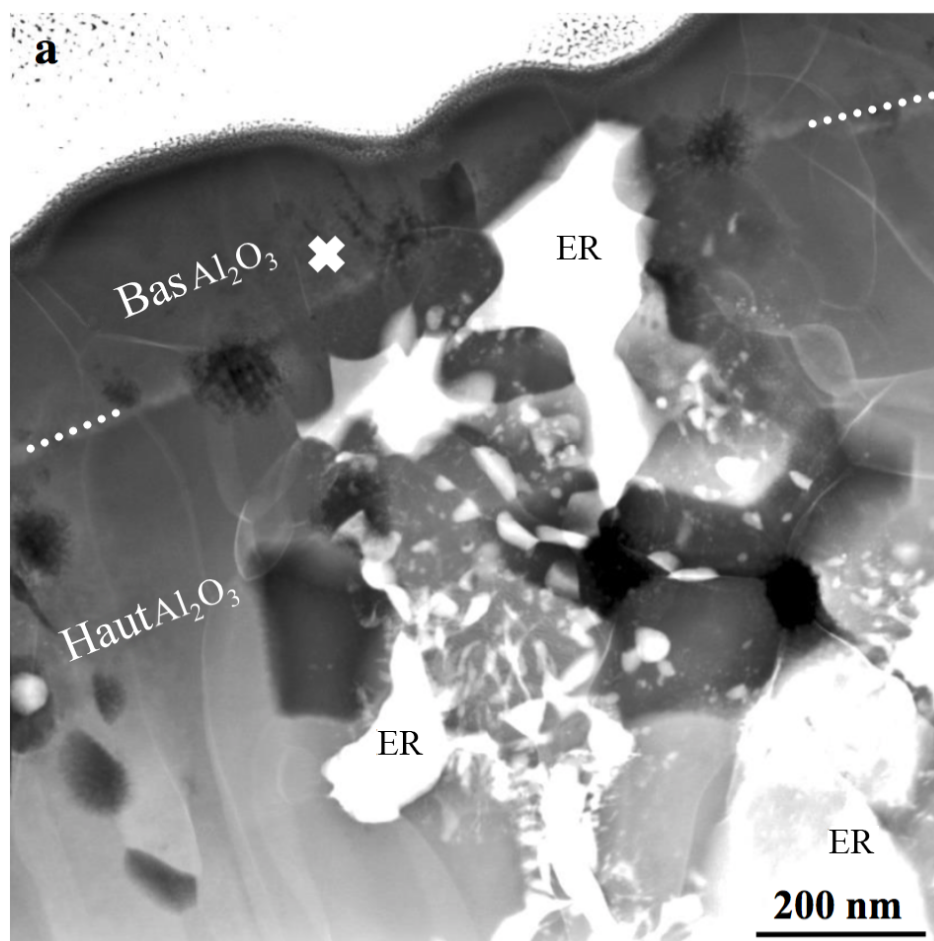


Figure 2.4 Micrographies MEBT de l'exposition d'APMT à 1100 °C pendant 168 h dans un environnement (O₂+N₂+H₂O) (Hellström *et al.*, 2015).

Zircaloy en contrôlant la composition isotopique de l'alliage FeCrAl ainsi que la nature des inclusions ER (Yamamoto *et al.*, 2015; Yano *et al.*, 2017). Sous irradiation neutronique, le matériau montre une excellente ductilité avec une elongation uniforme de l'ordre de 10% et jusqu'à ~15 déplacements par atome (Field *et al.*, 2015, 2017a). Dû à sa structure réticulaire cubique, une résistance à la corrosion 100 fois supérieure à celle de l'acier inoxydable a été observée dans les milieux aqueux (Andresen *et al.*, 2014). Dû à son haut niveau de flux de chaleur critique, la performance du combustible UO₂-FeCrAl est supérieure à celle du crayon actuel en conditions nominales et en occurrence opérationnelle anticipée OOA (Liu *et al.*, 2017). L'adoption de la solution ODS⁶-FeCrAl, par un renforcement de la dispersion d'oxyde, permet de corriger les incohérences oxydes dans le matériau, de diminuer le mouvement des dislocations et de retarder le fluage et ainsi le point d'éclatement de la gaine, tout en conservant la même cinétique d'oxydation jusqu'au point de fusion (Yano *et al.*, 2017).

6. ODS : acronyme de "Oxide dispersion strengthened alloys"

L'exposition de cet alliage à des événements RIAs a montré une ductilité importante lors des interactions mécaniques pastille-gaine (Cinbiz *et al.*, 2017).

2.2.2 Problématiques

L'adoption des alliages FeCrAl se trouve, cependant, confrontée à quatre défis, dont certains vont à l'encontre des contraintes fixées par Ott *et al.* (2014) (voir Section. 1.6). Un effort international tente de proposer des solutions à certains d'entre eux.

- (a) Défis économique et neutronique. Les pénalités neutroniques liées à l'utilisation du fer et du chrome induisent au moins 2 fois plus de captures neutroniques que le Zircaloy (Yunker et Fratoni, 2016). La compensation se fait soit par (i) une augmentation de l'enrichissement en matière fissile, soit par (ii) une diminution de l'épaisseur de la gaine, ou encore par (iii) une augmentation du diamètre de la pastille. Chacune de ces trois solutions implique des coûts supplémentaires. La première exigerait une étude neutronique pour une condition de criticité donnée alors que la deuxième et la troisième nécessiteront des études de thermohydraulique-neutronique couplées pour évaluer la performance des nouvelles géométries. Les augmentations dans les coûts de fabrication des assemblages LWRs sont évaluées de 15% à 25% (Terrani *et al.*, 2014c).
- (b) Défi radiologique lié au tritium. Des expériences menées par Peñalva *et al.* (2013), en examinant des températures couvrant la gamme 150–550 °C et des pressions de 1 kPa jusqu'à 150 kPa, dans des environnements d'hydrogène hautement purifiés, ont montré une perméabilité⁷ des alliages FeCr au transport du tritium. L'activation de la gaine s'explique par la forme réticulaire cubique de ⁵⁶Fe. Les travaux de Peñalva *et al.* (2014) ont montré que la diffusivité du tritium dans le matériau peut être diminuée⁸ en augmentant le contenu en ⁵²Cr. Le tritium, quant à lui, peut provenir soit des rares événements de fissions ternaires (2 à 4 fissions par 1000 fissions dans le combustible UO₂), soit des événements fréquents de captures neutroniques ¹⁰B(n,2α)³H se produisant dans le caloporteur empoisonné des PWRs (Hu *et al.*, 2015). Le deuxième événement est impossible⁹ dans les réacteurs CANDUs dû à la séparation mécanique entre le modérateur (empoisonné) et le caloporteur (non-empoisonné). L'activation du deutérium du caloporteur, pour donner du tritium, est un événement très rare. À cause de cette perméabilité, le tritium se mélangera avec la vapeur d'eau et atteindra les turbines pour une contamination du restant des compartiments (Terrani, 2018). Bien que

7. Cette perméabilité est évaluée à 100 fois celle du Zircaloy.

8. Diminuer sans toutefois l'éliminer

9. Il sera seulement possible si le FeCrAl a aussi été adopté pour remplacer le Zircaloy du tube de calandre, chose que nous n'examinons pas dans cette étude.

certaines études (Causey *et al.*, 2012; Rebak et Kim, 2016) ont montré que la couche alumine interne (α -Al₂O₃) formée peut servir de barrière à la diffusion du tritium vers le caloporteur, d'autres (Li *et al.*, 2017) ont montré que l'épaisseur de cette barrière est très faible à basse température (seulement 10–50 nm à une exposition de 300–600 °C).

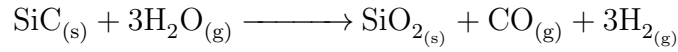
- (c) Défi d'oxydation. Les travaux de Robb (2015) et Robb *et al.* (2016) ont utilisé les propriétés thermophysiques, les plus récentes, des alliages FeCrAl ainsi que les modèles les plus raffinés décrivant leur cinétique d'oxydation pour simuler et tester la nouvelle réponse d'un BWR lors d'un SBO prolongé. La performance de la gaine a été validée en terme d'une plus lente cinétique d'oxydation et d'une génération d'hydrogène plus limitée. Il existe par contre un phénomène très peu compris et étudié qui engendre l'oxydation rapide de cet alliage au-delà de 1500 °C (Pint, 2017; Terrani, 2018).
- (d) Défis de la marge gagnée en BDBA. Les travaux de Robb (2015) et Robb *et al.* (2016) ont montré que, comparé au Zircaloy-IV, la marge gagnée en scénarios BDBA s'évalue de 1 à 5 heures. Peu d'études se sont intéressées à juger si ces marges sont significatives et suffisantes pour éviter une fusion du cœur (Terrani, 2018).

2.3 Les solutions à base de silice

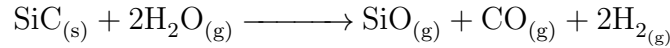
L'idée du recours au Silicium Carbone (SiC) dans l'industrie nucléaire date depuis les années 1950, lorsque le Pr. Rudolf Schulten proposa le silicium comme revêtement de combustible durant les travaux de conception du premier HTGR, initiés en 1947, dans le Power Pile Division des Laboratoires Clinton (aujourd'hui Oak Ridge) (Saurwein *et al.*, 1982). La synthèse de la fibre SiC hautement résistante à la traction, tel qu'adoptée par le secteur aéronautique et spatial, est due également à des travaux de R&D liés à l'industrie nucléaire (Yajima *et al.*, 1976). L'utilisation du SiC continue jusqu'à aujourd'hui dans les particules TRISO utilisées par les réacteurs HTGR et dans les réacteurs à lits de boulets (Goeddel, 1967; Fütterer *et al.*, 2014). Malgré sa dureté et sa rigidité (Yajima *et al.*, 1975, 1978), la fragilité de cette céramique (Brede et Haasen, 1988) l'empêche d'être utilisée telle que produite comme matériau de structure. Sa tenacité ainsi que sa résistance aux chocs thermique et mécanique sont alors augmentés en ayant recours à des renforts fibreux du composé SiC (Reuge, 2002). La solution silice proposée pour les ATFs se base sur la génération III des fibres SiC (Kondo *et al.*, 2015). Une association fibre/matrice (SiC/SiC) est ensuite nécessaire pour un gainage de combustible. L'infiltration chimique en phase vapeur (CVI) (Katoh *et al.*, 2014) et l'infiltration nano en phase eutectique transitoire (NITE) (Katoh *et al.*, 2004) sont les deux seules techniques ayant été prouvées produisant une association fibre/matrice stable sous irradiation neutronique.

2.3.1 Performances spécifiques du candidat

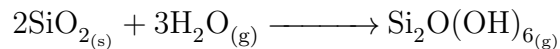
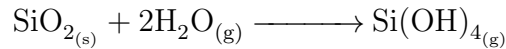
À haute température, l'oxydation du SiC par la vapeur d'eau peut avoir lieu suivant deux voies possibles, une dite "*passive*" et une seconde dite "*active*". L'oxydation du matériau commence à être observée à très haute température (Narushima *et al.*, 1989). En voie passive, un transport de molécule d'eau se fait jusqu'à la surface oxyde, l'oxydant réagit avec ^{28}Si à l'interface pour former une couche dense de silice (SiO_2). Une molécule de monoxyde de carbone (CO) et une seconde de dihydrogène (H_2) sont alors diffusées, à travers la couche, vers le caloporteur. Ces deux produits créent, à la suite de leurs diffusions, des porosités le long de leurs trajets.



Si la pression sur la gaine est très faible, le transport d'oxydant est difficile et la couche silice ne pourra pas être formée (Singhal, 1976). Le silicium et le carbone sont simplement vaporisés et l'oxydation observée est alors dite active et elle va comme suit :



De nombreuses études (Antill et Warburton, 1971; Vaughn et Maahs, 1990; Opila et Jacobson, 1995; Balat, 1996; Schneider *et al.*, 1998) ont tenté de fixer un critère pour que l'oxydation active puisse être observée et les expériences ont montré qu'elle ne se produit que lorsque la pression de vapeur d'eau partielle est de l'ordre de 10 Pa. L'industrie nucléaire fait appel à des environnements de haute pression et température, et donc la forme active ne sera pas matière à discussion. Lorsque la couche silice est formée, une autre réaction d'équilibre se produit et la silice commence à se volatiliser en formant de l'hydroxyde de silicium ou de l'oxyhydroxyde de silicium, suivant plusieurs voies possibles. Parmi ces voies, on cite (Avincola *et al.*, 2015) :



L'oxydation et la volatilisation sont deux réactions simultanées. Pour quantifier le niveau de dégradation d'une couche oxyde, Tedmon (1966) proposa le modèle para-linéaire pour l'évolution de la couche (Cr_2O_3) en supposant que la volatilisation est décrite par une constante

linéaire (k_l) alors que l'oxydation l'est par sa constante parabolique (k_p). [Opila et Hann \(1997\)](#) ont adopté ce modèle pour la couche (SiO_2), stipulant que le changement d'épaisseur x de la couche oxyde obéit à :

$$\frac{dx}{dt} = \frac{k_p}{2x} - k_l, \text{ où } k_l \sim \sqrt{\frac{v}{P_{\text{tot}}}} P(\text{H}_2\text{O})^2. \quad (2.1)$$

Il a été aussi démontré que la constante parabolique d'oxydation est proportionnelle à la pression de la vapeur d'eau $P(\text{H}_2\text{O})$, alors que la constante linéaire de volatilisation dépend de la vitesse d'écoulement v ainsi que la puissance totale P_{tot} . Cela implique qu'à l'état d'équilibre stationnaire, les deux réactions, oxydation et volatilisation, se produisent au même rythme et l'épaisseur x de la couche oxyde aura une valeur constante. En d'autres mots, l'épaisseur de la silice augmente paraboliquement jusqu'à atteindre sa valeur limite¹⁰ $k_p/2k_l$. La perte de silicium et donc la récession de la gaine adoptent un comportement linéaire lorsque l'épaisseur oxyde s'approche de sa valeur limite ([Lee et al., 2013](#)). Cette dynamique de dégradation et de formation continue de silice empêchera l'oxygène de dégrader la structure interne du silicium par diffusion solide. Dans des conditions non-stationnaires, la théorie de Chapman-Enskog est utilisée pour modéliser le coefficient de diffusion des oxydants et la constante parabolique ([Geiger et Poirier, 1973](#)). La compréhension du comportement de la constante linéaire de volatilisation est toujours à un stade immature et la modélisation de la volatilisation de la silice ne traite qu'une gaine de dimension infinie ([Opila et al., 1999](#)). Il est estimé que la couche limite, créée par l'écoulement, à la surface du silice affecte la volatilisation, ce qui pourrait expliquer le lien de dépendance directe entre la récession du matériau et les caractéristiques du caloporteur, i.e son débit, sa densité et son nombre de Reynolds ([Wu et al., 2006](#); [Lee et al., 2013](#)).

La Fig. 2.5 montre, pour la gamme 1400–1700 °C, un spécimen SiC exposé pendant 4 h à différentes vitesses d'écoulement du caloporteur, à une pression atmosphérique. À mesure que la température augmente et que la vitesse d'écoulement diminue (Fig. 2.5, *b-d*), il y a apparition et propagation de fissures à la surface du matériau, ce qui crée un champ de stress à densité croissante¹¹ et réduit la résistance de la gaine à la flexion. [Terrani et al. \(2014a\)](#) ont expliqué l'apparition et la disparition de fissures par une différence dans le coefficient d'expansion thermique entre la couche oxyde SiO_2 ([Swainson et Dove, 1995](#)) et la matrice SiC ([Snead et al., 2007](#)). [Lee et al. \(2013\)](#) montrent que la résistance du matériau peut diminuer jusqu'à 50% à la suite d'une exposition de 10 h à 1400 °C, dans les mêmes conditions de pression, dans un environnement H_2 – H_2O . Le grossissement à 1700 °C (Fig. 2.5, *f*) permet

10. Cette réaction est lente.

11. Une densité croissante est détectée seulement sous ces conditions de vitesse d'écoulement affaiblie.

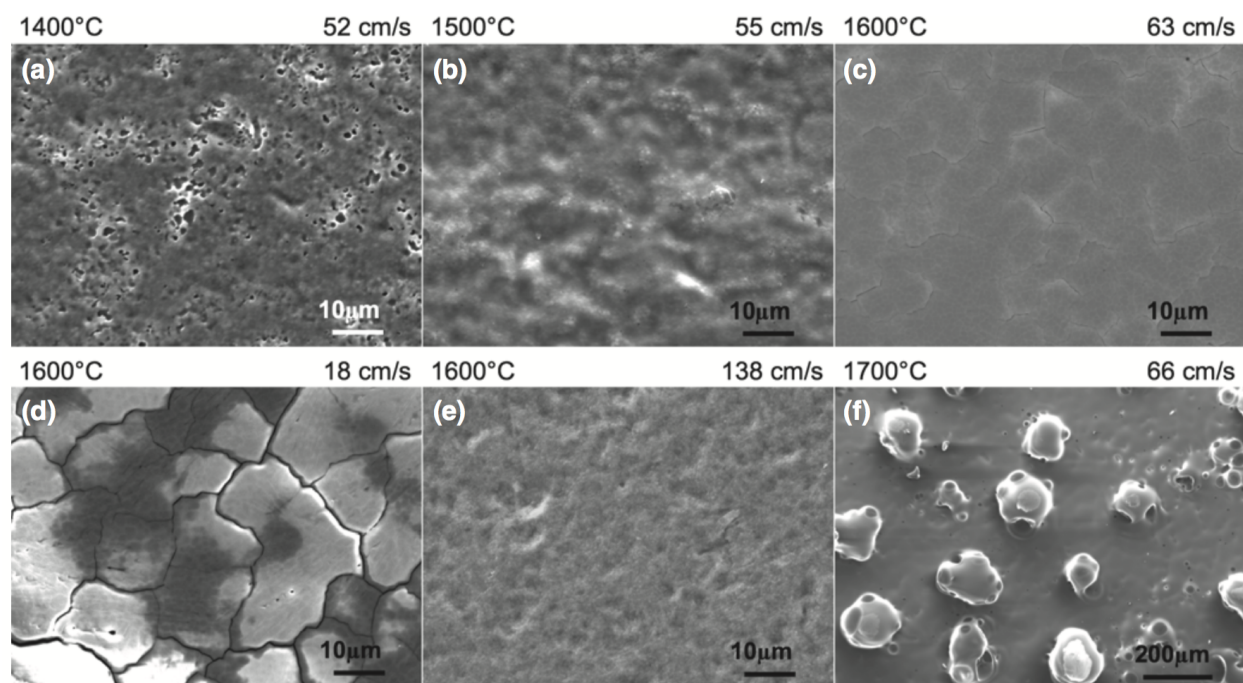


Figure 2.5 Micrographies d'une MEBT après 4 h d'exposition d'un spécimen CVD-SiC, à pression atmosphérique, à une température de (a). 1400 °C, (b). 1500 °C, (c-e). 1600 °C et (f). 1700 °C (Terrani *et al.*, 2014a).

de distinguer la formation de la couche protectrice de silice. Bien que l'épaisseur de silice ne soit pas uniforme sur tout le spécimen, aucune corrosion n'est observée à partir de ce point et la résistance du matériau augmente. Lee *et al.* (2013) pensent¹² que cette nouvelle résistance résulte de l'émoussement des fissures à la suite de la formation des nodules de SiO₂ au niveau des pointes de fissures. L'extrémité d'une fissure, initialement de morphologie aiguë, se trouve arrondie pendant l'oxydation, arrêtant ainsi sa propagation. Le profil de pénétration d'oxygène est quasi-nul dans le réseau cristallin α -SiC dans les composés CVD/CVI-SiC (bien fabriqués) (Minford *et al.*, 1983). Les bulles observées à l'intérieur de la silice (voir Fig. 2.5, f et Fig. 2.6, a-c) correspondent aux produits gazeux d'oxydation (CO et H₂). Plusieurs examens similaires (Easler *et al.*, 1981; Kim et Moorhead, 1989) indiquent le même constat : une corrosion préliminaire et une disparition de celle-ci avec l'apparition de la silice. Les travaux de Lee *et al.* (2013) confirment que le débit massique du caloporteur a une influence majeure sur le processus de volatilisation. À 1140 °C, à pression atmosphérique, le taux changement de masse linéique est de $(1.0 \pm 0.375) \times 10^{-2}$ mg/cm² pour un débit de 2.4 g/cm contre $(1.92 \pm 0.090) \times 10^{-2}$ mg/cm² pour un débit de 16 g/cm. Comme mentionné pour les produits d'oxydation, les produits de volatilisation diffusent aussi vers l'extérieur à travers la couche limite formée par le caloporteur sur la surface de la gaine. L'augmentation

12. Il s'agit du terme utilisé par les auteurs lors de leur discussion de ce phénomène.

du débit diminue l'épaisseur de la couche limite, ce qui raccourcit le chemin de diffusion. Cela explique l'augmentation du taux de perte de poids avec un débit croissant. Cet effet n'est significatif qu'à haute température (Opila, 2003). La stœchiométrie, les porosités, la densité et les conditions de fabrication de SiC affectent aussi la cinétique de volatilisation de la couche oxyde. Aux alentours de 1200 °C, le ratio de l'épaisseur de gaine ayant réagi par rapport à l'épaisseur initiale est de l'ordre de 1% (débit de 3 g/cm) pour le Zircaloy contre 0.0002% (débit de 2.4 g/cm) pour SiC (Lee *et al.*, 2013). Une durée d'exposition deux fois plus longue, à haute pression, montre (Fig. 2.6) une distinction de la couche SiO₂ à plus faibles températures due au lien de proportionnalité entre la constante d'oxydation parabolique (cinétique) k_p et la pression de vapeur. La cinétique d'oxydation est largement plus lente que toute autre gaine considérée. Le réseau de porosités observé à haute pression facilite le transport autocatalysé des produits d'oxydation gazeux vers l'extérieur. L'observation de la récession de ce matériau ainsi que l'énergie d'activation de l'oxydation passive de SiC en milieu de vapeur sont toujours matières d'investigation (Terrani *et al.*, 2014a). À pression atmosphérique, Snead *et al.* (2007) montrent que la gaine SiC ne se décompose que dans la gamme 2400–2730 °C, sans aucune observation de ramollissement ou de déformation appréciable. Le début de ramollissement de Zircaloy est amorcé aux alentours de 1000 °C avec libération de produits de fission. Cette haute performance de SiC réduit de 35% la fraction minimale submergée requise le long du crayon de combustible lorsque comparée au Zircaloy (Lee *et al.*, 2013).

À des températures nominales d'opération, les tests d'irradiation neutronique excluent toute sensibilité mécanique de la matrice CVI-SiC au flux neutronique (Koyanagi et Katoh, 2017). Une analyse thermodynamique du système UO₂/SiC, sur la gamme 1227–1697 °C, montre qu'aucune interaction chimique notable entre la pastille et la gaine ne peut avoir lieu en-dessous de 1427 °C (Braun *et al.*, 2017).

2.3.2 Problématiques

Les problématiques auxquelles la gaine SiC fait actuellement face sont les suivants :

- (a) Défi de corrosion. On a vu qu'en voie d'oxydation passive, la silice (SiO₂) ne se forme que lorsqu'une association oxygène-carbone en phase gazeuse a lieu. Cette dissolution du carbone marque une première voie de dégradation de l'ensemble silicium-carbone. Hirayama *et al.* (1989) sont les premiers à avoir quantifié la perte de masse à 290 °C d'un spécimen SiC, alors que Kim *et al.* (2003) ont quantifié la dégradation du CVD-SiC à 360 °C dans l'optique d'une adoption dans les LWRs. Dans les conditions non-stationnaires, l'oxydation et la volatilisation ne se produisent pas au même rythme et

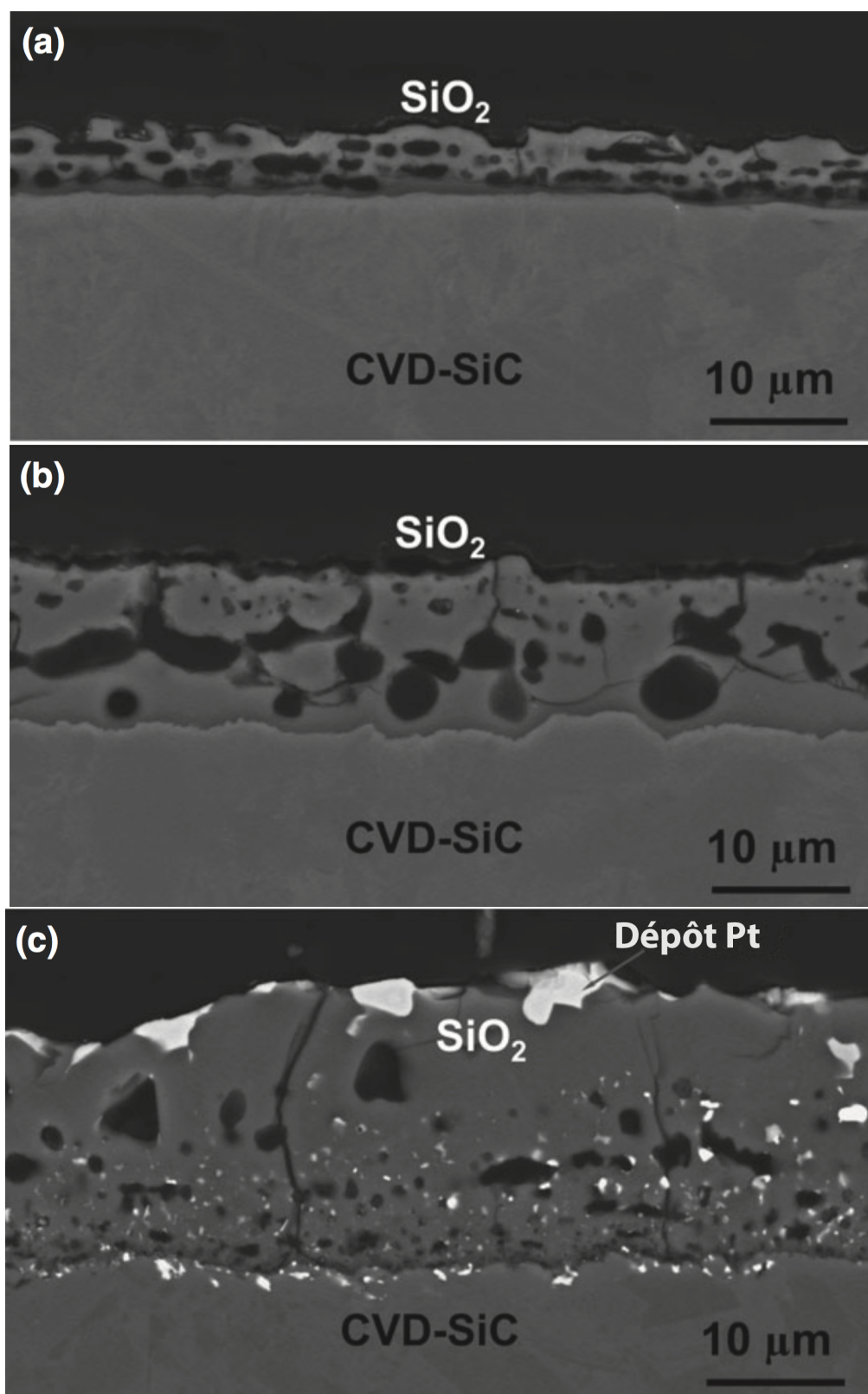


Figure 2.6 Micrographies d'une MEBT après 8 h d'exposition d'un spécimen CVD-SiC, à 0.34 MPa, à une température de (a). 1200 °C, (b). 1300 °C et (c). 1350 °C ([Terrani et al., 2014a](#)).

donc l'épaisseur de silice ne peut être constante (Gulbransen et Jansson, 1972; Opila, 2003). L'oxydation du SiC est un processus long, alors que la volatilisation de la silice se produit dès que cette dernière est formée (Icenhower et Dove, 2000). Cela constitue la deuxième voie de dégradation de ce matériau. L'activité d'oxygène dans le caloporteur est le moteur de la corrosion de SiC (Kim *et al.*, 2015b). Terrani (2018) rapporte qu'un changement de masse linéique mensuel de 0.1 mg/cm^2 implique une perte annuelle d'épaisseur au sein de la gaine SiC de l'ordre de $3.7 \mu\text{m}$, ce qui est équivalent à 55 kg de silice, d'hydroxyde de silicium et d'oxyhydroxyde de silicium déposés annuellement dans le caloporteur. Le taux de corrosion de NITE-SiC est 10 à 100 fois plus rapide que celui du CVD-SiC (Parish *et al.*, 2017).

La solution proposée à ce défi consiste à adopter un revêtement résistant à la corrosion, notamment Cr, CrN et TiN. Des tests de corrosion à 288°C , à des pressions de l'ordre 7.5 MPa, montrent (Ishibashi *et al.*, 2017a) une protection complète du substrat CVD-SiC. Le taux de fluage de ces revêtements sous irradiation neutronique doit être quantifié.

- (b) Défi radiologique. Terrani (2018) note que les composites SiC/SiC ont été brillamment conçus pour présenter une ductilité macroscopique et sont donc des matériaux structuraux robustes. Cependant, le mécanisme qui facilite cette ductilité macroscopique consiste en une microfissuration de la matrice de SiC (puisque le module de la matrice est plus élevé que la fibre, elle se fissure en premier) suivi d'un pontage de fibre et d'un retrait. Bien que la possibilité de rupture de la gaine SiC à la suite du développement de fissures s'avère difficile (nécessitant une contrainte de traction ultime de l'ordre de 200–400 MPa), ce phénomène requiert une attention particulière si SiC est adopté comme ATF. En contre-partie, l'apparition du champ de micro-fissures, en conditions nominales d'opération des PWRs, BWRs et PHWRs, créera un réseau pour la propagation des produits de fission gazeux et induira une contamination du circuit primaire (Kim *et al.*, 2013b, 2015a).

Les études se focalisent, présentement, sur le champ de stress développé à la suite de la propagation des micro-fissures (Lee et Kazimi, 2015) et non sur la fuite radioactive, sauf que Terrani (2018) mentionne que si les revêtements Cr, CrN et TiN sont adoptés pour corriger le problème de corrosion (après un examen de leur stabilité mécanique sous irradiation neutronique), ils pourraient servir de barrières pour la contamination radioactive. Les processus d'apparition et de disparition de fissures, de gonflement de la gaine et de l'affaiblissement de sa conductivité à haute température (Carpenter, 2010) nécessitent également d'être élucidés.

- (c) Défis de la marge gagnée en BDBAs. La formation de porosités à travers SiC à la suite

de la diffusion des produits d'oxydation et de la volatilisation à été détectée et étudiée à pression atomosphérique (Lee *et al.*, 2013) et à haute pression (Terrani *et al.*, 2014a). Cependant, aucune étude ne s'est intéressée à étudier ces porosités et l'intégrité de la gaine, à haute pression à des températures supérieures à 1700 °C.

2.4 Les solutions à base de chromine

Bien que cet alliage contient un haut pourcentage de ^{56}Fe , les contenus en ^{52}Cr (25.2%) et en ^{59}Ni (19.5%) permettent à l'acier inoxydable austénitique 310SS (voir Tableau 2.3) de développer une couche chromine protectrice à haute pression et température (Mortimer et Sharp, 1968). La criticité du réacteur EBR-I a été atteinte en 1951 en ayant recours à un tel alliage (Walters *et al.*, 1984). L'adoption de l'acier inoxydable a continué dans certains LWRs, en parallèle à la décision Rickover, jusqu'en 1980 (Strasser *et al.*, 1982). Son abandon est dû à son faible facteur d'utilisation thermique jumelé à un taux de rupture semblable à celui du Zircaloy (Terrani *et al.*, 2014c). Des alliages austénitiques ont été également utilisé dans les deux premières chaudières à vapeur ultra-supercritique à l'Unité 6 de la centrale Philo en 1957 (Masuyama, 2001) ainsi que l'Unité 1 de la centrale Eddystone en 1960, aux États-Unis (Henry *et al.*, 2007). Cependant, très peu de rapports ou d'études ont été rendus publics en ce qui concerne la cinétique d'oxydation de ce matériau.

Tableau 2.3 Composition isotopique des matériaux austénitiques.

Matériau	^{56}Fe	^{52}Cr	^{28}Si	^{12}C	^{27}Al	^{59}Ni	^{55}Mn	^{96}Mo	^{93}Nb	^{14}N	^{48}Ti
304SS	71.35	18.9	0.42	0.028	-	8.35	0.70	0.27	-	-	-
310SS	52.55	25.22	0.7	0.044	-	19.51	1.9	0.122	-	-	-
AL6XN	48.2	20.4	0.05	0.012	0.01	24.1	0.5	5.98	-	0.2	-
E-BRITE	72.6	25.8	0.22	0.003	-	0.13	-	1.00	0.1	-	-
AL294C	66.1	28.6	0.27	0.017	0.07	0.19	0.21	3.70	0.3	-	0.37
HR3C	51.97	24.6	0.39	0.06	-	21.0	1.26	-	0.47	0.25	-

2.4.1 Performances spécifiques du candidat

Il a été constaté que la diffusion d'oxygène à l'intérieur de la structure ferritique de l'acier inoxydable conventionnel 304SS permettrait la formation d'une couche d'oxyde de fer (FeO , Fe_3O_4 et Fe_2O_3) (Ziemniak et Hanson, 2002). Comme pour la zircone (ZrO_2), ces couches sont thermodynamiquement stables en milieu de vapeur, mais leurs taux de croissance (dus à une forte perméabilité au transport d'oxygène et une grande affinité cationique) les empêchent d'assurer une protection du matériau au-delà de 525 °C (Lister *et al.*, 1987). Une

cinétique d'oxydation rapide s'accompagne par une décomposition moléculaire du caloporteur et donc une génération d'hydrogène à capacité explosive (Kaneko *et al.*, 2004). La mesure dans laquelle l'oxyde fournit une protection au matériau dépendra alors de la vitesse à laquelle l'espèce réagissante peut diffuser à travers celle-ci, une propriété qui est dictée par la structure ionique et cristallographique de l'oxyde (Sabioni *et al.*, 1992; Wright et Dooley, 2010). Pour une bonne protection de l'alliage, la couche devrait être théoriquement solide, continue, complète, dense, sans fissures et adhérente (Brady *et al.*, 2000; Wright et Dooley, 2010). Il a été observé qu'il existe un enrichissement minimal en ^{52}Cr requis pour les alliages FeCr pour qu'une couche chromine se forme (Footner *et al.*, 1967). Nishiyama *et al.* (2003) ont démontré, en exposant des alliages austénitiques (y compris ceux des centrales Philo et Eddystone) pendant 7 h à 700 °C, qu'il est possible de diminuer drastiquement le taux d'oxydation en augmentant le pourcentage en ^{52}Cr à plus de 21 – 22%. Wright et Dooley (2010) ont retenu qu'il existe deux classes d'austénitiques, (i) ceux avec un duel chrome-nickel, ($< 20\%$ [^{52}Cr]) et ($< 20\%$ [^{59}Ni]), montrant une cinétique d'oxydation rapide et (ii) ceux avec un seuil chrome-nickel, ($> 22\%$ [^{52}Cr]) et ($\geq 20\%$ [^{59}Ni]), montrant une lente cinétique d'oxydation. La Fig. 2.7 montre une exposition prolongée d'un alliage austénitique à haute pression à une gamme de température de 552–750 °C. Initialement, la pénétration d'oxygène induit une couche superficielle continue de spinelle (FeCr_2O_4) très riche en ^{52}Cr qui, par diffusion interne de ^{56}Fe et diffusion externe d' ^{16}O , devient la couche chromine (Cr_2O_3). Cette couche, à priori mince et uniforme, persiste pour une durée prolongée (voir Fig. 2.7, a et b¹³) en suivant une lente oxydation parabolique.

Tedmon (1966) a été le premier à proposer qu'une transition de la cinétique parabolique à un comportement quasi-linéaire a lieu après une longue période d'exposition¹⁴, lorsque la couche Cr_2O_3 a atteint son épaisseur limite. Cela explique l'épaississement de la couche observé à une période cinq fois plus longue (Fig. 2.7, c). Il y a également une pénétration préférentielle de ^{56}Fe le long des joints de grains. La dégradation locale de la couche est donc amorcée avec l'apparition de nodules appauvris en (^{52}Cr , ^{59}Ni) et riches en ^{56}Fe . Une couche chromine “*cicatrisante*” se développe à la base de ces nodules pour empêcher une évolution de leurs tailles. Après des périodes plus longues, ces nodules se répandent sur toute la surface protectrice. Le transport ionique de ^{56}Fe se termine par la formation d'hématite Fe_2O_3 . L'intrusion de ^{96}Mo comme dans le cas du 310SS permet un meilleur contrôle sur le transport des cations ferritiques.

L'exposition de différents alliages austénitiques (à différentes teneurs en ^{52}Cr , ^{59}Ni et intrusions ER) pendant 48 h à une température de 1200 °C et une pression de 3.4 bar a été

13. Notez que la vapeur d'eau passe à la surface extérieure de l'alliage, soit l'espace en *noir* sur la Fig. 2.7.

14. Ces périodes sont assujetties à la température d'exposition du matériau.

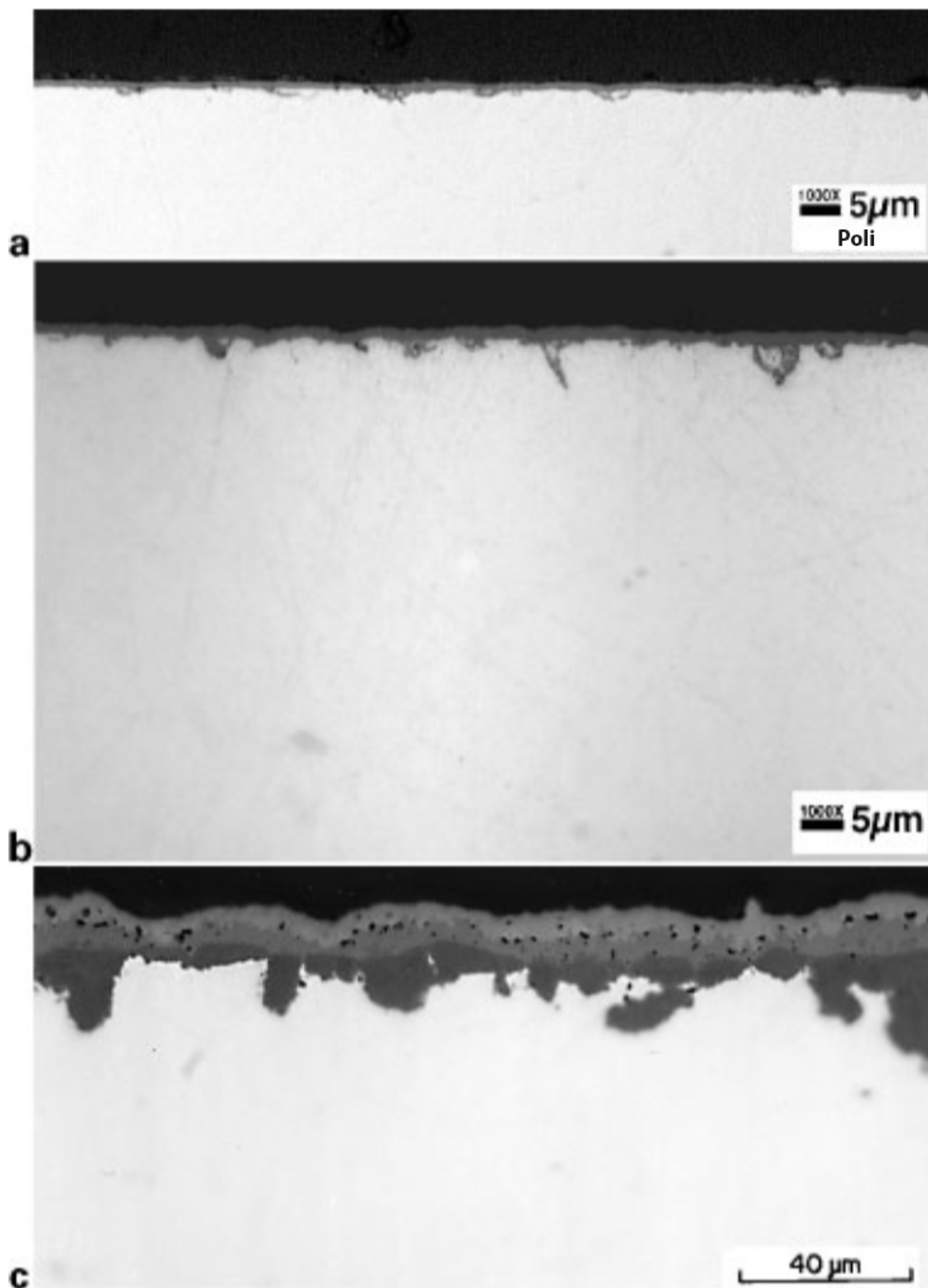


Figure 2.7 Micrographies MEBT d'un alliage auténitique HR3C(25Cr-20Ni) exposé à la vapeur d'eau, à une pression de 1.7 MPa, pendant (a). 4000 h à 650 °C, (b). 4000 h à 750 °C et (c). 21 000 h à 552 °C ([Wright et Dooley, 2010](#)).

étudiée par [Pint *et al.* \(2013\)](#) (voir Fig. 2.8). Les 4 austénitiques contenant les seuils en

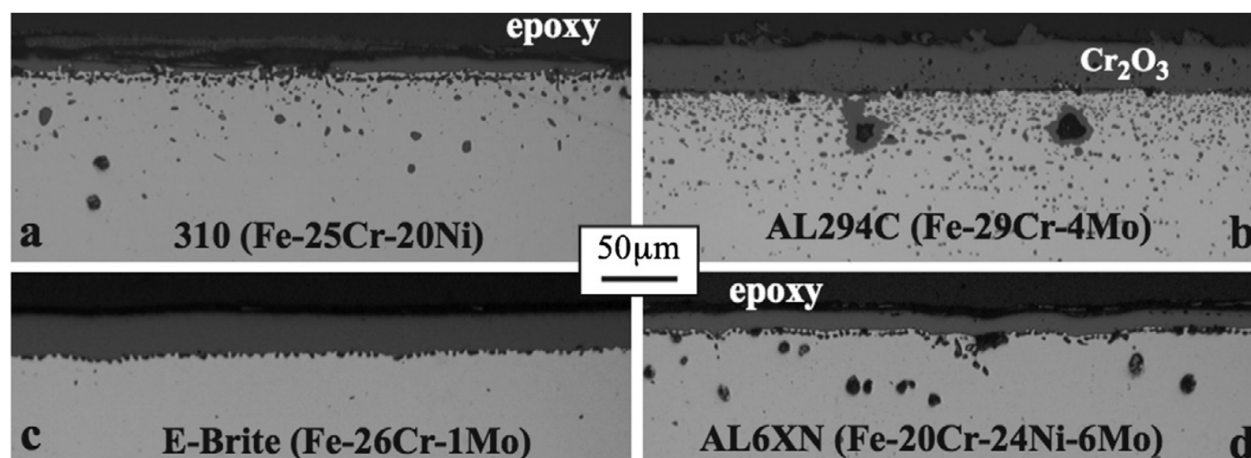


Figure 2.8 Microscopie optique après 48 h d'exposition en milieu de vapeur, à 1200 °C, à une pression de 340 kPa pour les alliages austénitiques (a). 310SS, (b). AL294C, (c). E-Brite et (d). AL6XN ([Pint *et al.*, 2013](#)).

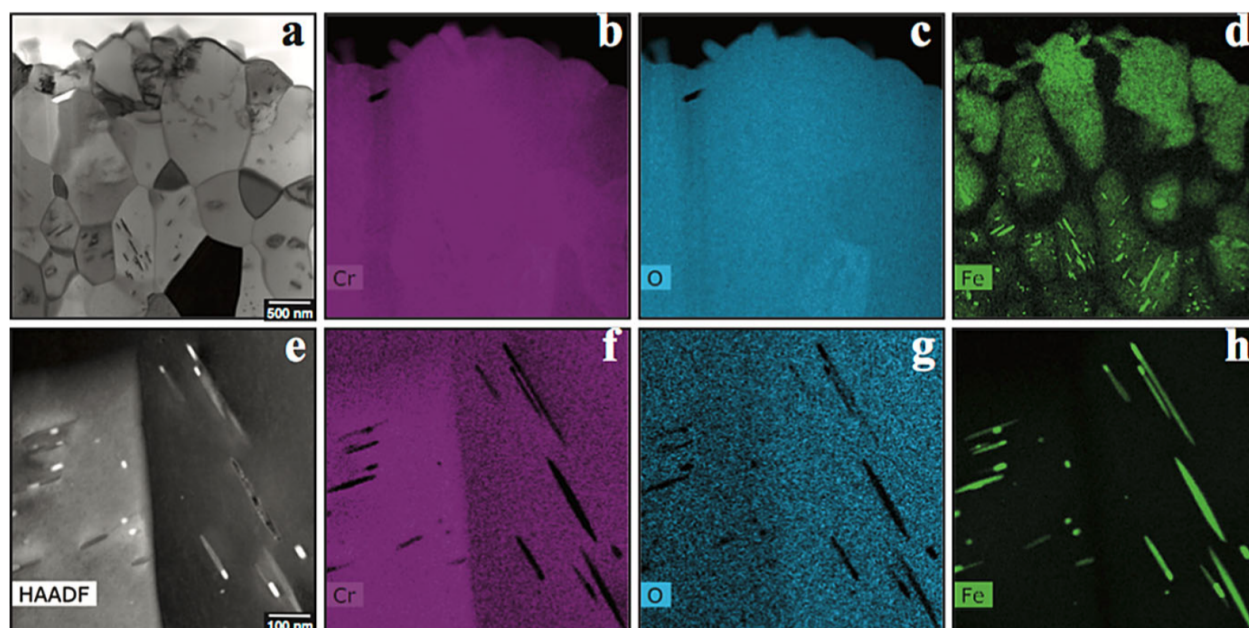
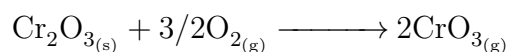


Figure 2.9 Microscopie MEFT et réflectométrie par rayons X de la couche chromine après 4 h d'exposition, à 1200 °C, en milieu de vapeur de l'alliage austénitique E-BRITE ([Pint et Unocic, 2017](#)).

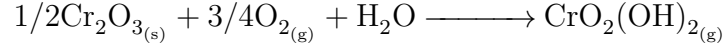
^{52}Cr montrent la formation d'une couche $\alpha\text{-Cr}_2\text{O}_3$ protectrice avec des incorporations en ^{56}Fe , ^{55}Mn et ^{96}Mo . L'oxydation interne distinguée du réseau métallique de l'alliage AL294C

(Fig. 2.8, *b*) s'explique par la présence de 0.37% de ^{48}Ti . La présence du titane perturbe la diffusion de chrome par sa grande affinité à la formation de l'oxyde TiO_2 (Berthod *et al.*, 2016). La présence de 0.22% de silicium dans l'alliage E-BRITE a permis la formation d'une couche de silice, au-dessous de la couche chromine (Fig. 2.8, *c*), empêchant par sa stabilité thermodynamique toute pénétration d'oxygène dans le réseau métallique de base. Pint et Unocic (2017) notent que la cristallisation de silice en-dessous de 1200 °C serait sans bénéfice pour ce type d'alliage. La présence de 1.0% d'intrusion ^{96}Mo a eu un meilleur contrôle sur la croissance et la dégradation de la chromine. L'incorporation significative de ^{56}Fe dans la couche chromine de l'alliage E-BRITE reste sans explication. Pint et Unocic (2017) pensent que cela pourrait être dû à (*i*) un temps de nucléation d'oxyde assez long pour permettre la saturation ferritique, une éventuelle précipitation et un changement dans la solubilité avant la formation de silice, ou encore à (*ii*) une couche oxyde externe riche en ^{56}Fe se formant initialement à l'interface vapeur-métal, suivie d'une incorporation de ^{52}Cr en joints de grains. Ce métal ne peut tout de même pas être retenu comme candidat austénitique ATF car sa cinétique d'oxydation ne respecte pas le critère 100X en-dessous de celle du Zircaloy fixé par Pint *et al.* (2015), soit une épaisseur d'oxyde de 1 μm (à la place de 100 μm pour la zircone) et une constante parabolique k_p réduite d'un facteur de 10^4 . 310SS et AL6XN (Fig. 2.8, *a* et *d*) forment deux couches Cr_2O_3 de même épaisseur. La présence d'un plus haut contenu en ^{59}Ni permet, par sa structure réticulaire cubique, de conférer au métal une meilleure résistance à la corrosion sous contrainte, alors que le haut contenu en ^{96}Mo contrôle le transport anionique et cationique au sein de la couche protectrice, ce qui explique pourquoi Cr_2O_3 est plus adhérente dans le cas du AL6XN. La candidature de ce dernier ne sera pas retenue à cause de ses larges pénalités neutroniques dans la gamme thermique et épithermique.

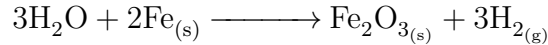
En examinant des températures de 1000 °C, 1200 °C et 1400 °C, Tedmon (1966) applique son modèle d'oxydation théorique, en ayant recours aux constantes paraboliques et linéaires mesurées par Hagel (1962), pour la couche chromine. Il montre, dans un premier temps, que pour des périodes inférieures à 10^5 s, la diffusion en état solide des espèces cationiques (Cr^{3+}) et anioniques (O^{2-}) suit une cinétique parabolique. À 10^6 s, les données gravimétriques confirment une transition de la cinétique parabolique à un comportement quasi-linéaire. La couche chromine aurait ainsi atteint son épaisseur limite. Plus la température d'exposition est élevée, plus la période à laquelle la couche limite serait observée serait courte. Une fois l'épaisseur limite atteinte, une récession du matériau austénitique s'amorce et suit un comportement linéaire par une volatilisation du chrome selon la première voie possible en milieu de vapeur pure :



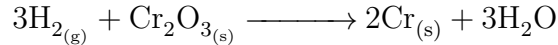
ou encore une seconde voie de volatilisation possible en présence de vapeur saturée :



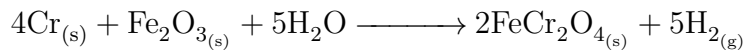
À 10^7 s, à une température de 1200°C , [Tedmon \(1966\)](#) constate que la transition en cinétique linéaire est essentiellement complète. [Asteman *et al.* \(1999\)](#) ont quantifié un début de volatilisation du chrome dans des alliages Fe-18.5Cr-10.2Ni à 600°C en présence de 10% de vapeur d'eau. [Jianian *et al.* \(1997\)](#) ont observé la faiblesse qu'introduisent les incorporations ^{56}Fe dans la couche chromine, au cours de sa volatilisation, pour des alliages Fe-15Cr et Fe-20Cr, en milieu de vapeur, sur une gamme de $900\text{--}1000^\circ\text{C}$. À mesure que les cations $^{52}\text{Cr}^{3+}$ diffusent vers l'extérieur de la couche protectrice, des porosités et des micro-fissures sont formées, en particulier aux coins et aux bords. [Kofstad \(1985\)](#) a déjà constaté que la majorité des couches oxydes suivent une croissance, des déformations plastiques sous contrainte de température et de pression, laissant ainsi apparaître des micro-canaux. Ces micro-canaux et micro-fissures permettent aux molécules (O_2), (H_2) et (H_2O) de traverser l'intégralité de la couche Cr_2O_3 et de réagir avec les espèces constituant le réseau massif à l'interface oxyde-métal ([Polman *et al.*, 1989](#)). Si les micro-canaux sont assez larges, une molécule d'eau pourrait être transportée jusqu'à la surface du métal, et puisque le milieu est appauvri en ^{52}Cr , elle réagirait avec les entités ferritiques pour former de l'hématite solide (Fig. 2.10) :



Pour que le dihydrogène, issu de la production d'hématite, soit diffusé vers le caloporteur, le transport devrait se faire à travers la couche chromine. À ce moment, la couche protectrice se dégrade par ségrégation cationique :



Cette génération de molécule d'eau facilite un transport vers le réseau massif et une sur-génération d'hématite, qui à son tour accélère la dégradation de la couche chromine. D'un autre côté, les cations de chrome réagiront avec l'hématite Fe_2O_3 pour former des spinelles FeCr_2O_4 (Fig. 2.10) :



Cette transformation d'hématite en spinelles génère plus d'hydrogène, chose qui va accélérer d'autant plus la dégradation de la couche chromine et ainsi l'accumulation du di-hydrogène

dans le circuit primaire. On retient donc que l'apparition de micro-fissures et la première réaction de l'oxygène avec les entités métalliques induisent une dégradation auto-catalysée de la couche protectrice. [Hussey *et al.* \(1989\)](#) ont montré, à 1100 °C, que les revêtements de cérine pulvérisée, ayant une épaisseur minimale de 4 nm, pourraient inhiber le transport de molécules d'eau à travers les micro-canaux de Cr_2O_3 et réduire la formation d'hématite à un niveau de 1%. [Shen *et al.* \(1992\)](#) ont confirmé que les revêtements de cérine sur des alliages Fe-25Cr empêcheront la dégradation de la couche chromine, mais la cérine ne pourra pas résister plus que 20 h à 1100 °C. [Hou et Stringer \(1995\)](#) ont montré que la croissance de la couche chromine et la formation d'hématite sont deux phénomènes pouvant être totalement découplés, en freinant le dernier, par 0.1 à 0.2% d'incorporations d'éléments réactifs (ER)¹⁵. De telles présences dans une couche Cr_2O_3 pourront (i) améliorer la sélectivité du ^{52}Cr nécessaire pour former l'oxyde ([Stringer, 1989](#)), (ii) ralentir d'un facteur 10 la cinétique parabolique d'accroissement de la chromine au-delà de 900 °C ([Whittle et Stringer, 1980](#)), (iii) changer le mécanisme de transport de cationique vers la surface à un transport anionique vers l'interface (soit en retardant la diffusion Cr^{3+} ([Przybylski *et al.*, 1988](#)) ou en annihilant les lacunes métalliques à l'interface métal-oxyde ([Pieraggi et Rapp, 1988](#))) et (iv) améliorer l'adhésion de la couche oxyde. L'adhésion de la couche chromine peut s'améliorer par une incorporation à l'interface empêchant une condensation des porosités ([Stringer, 1966](#)), améliorant la résistance mécanique de l'interface en freinant la propagation des micro-fissures et l'élargissement des micro-canaux ([Cotterell et Rice, 1980](#); [Hindam et Whittle, 1983](#)), ce qui multiplie d'un facteur de quatre l'épaisseur critique nécessaire pour toute propagation de défauts ([Bennett et Tuson, 1989](#)) et améliore ainsi la plasticité de l'oxyde ([Tortorelli, 1993](#)).

[Asteman *et al.* \(2002\)](#) découvrent un lien entre le débit du caloporteur et la détérioration de la couche chromine dans l'alliage austénitique 310SS. La Fig. 2.11a, montre que 168 h d'exposition à 600 °C, à une atmosphère de vapeur pure, permet la formation d'une couche protectrice $\alpha-(\text{Cr,Fe})_2\text{O}_3$, ayant une épaisseur de 80 nm avec 70% de ^{52}Cr . À un faible débit d'eau, on détecte (Fig. 2.11b) les premiers signes d'une détérioration de la couche par une volatilisation du chrome. La différence dans le contraste des couleurs entre les Figs. 2.11, a et b, indique que l'oxyde diffère soit en épaisseur ou en composition chimique. La diffractométrie par rayons X et la spectrométrie Auger montrent que le ratio $^{52}\text{Cr}/^{52}\text{Cr}+^{56}\text{Fe}$ est alors réduit à 30%. À mesure que le débit d'eau augmente, le taux de vaporisation s'accélère et la diffusion de chrome de l'alliage vers la couche n'est plus en mesure de contrebalancer l'effet de volatilisation dans l'oxyde. [Asteman *et al.* \(2002\)](#) appellent ce phénomène un défaut en alimentation en chrome de l'alliage austénitique et l'expliquent par une vitesse de diffu-

15. Ces éléments doivent être finement dispersés. Dépasser 1% d'incorporations peut mener à une détérioration de la couche oxyde.

sion beaucoup plus élevée dans les joints de grains qu'à l'intérieur de la structure cristalline. Lorsque la concentration de chrome dans l'oxyde a atteint cette valeur critique, la couche perd sa propriété "*protectrice*" et agit exactement comme une couche $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$, soit comme un acier conventionnel. Lorsque la concentration de chrome dans l'oxyde est réduite à sa valeur critique, la formation d'îlots d'hématite, ayant une épaisseur de $5\text{ }\mu\text{m}$, commence à être observée (Fig. 2.11, c) à l'intérieur des grains de l'alliage avec une présence sporadique de ^{55}Mn . L'oxyde joignant les hématites aurait ainsi atteint une épaisseur de 250 nm à débits élevés (contre 50 nm à faibles débits) et sa ténacité est attribuée au chrome proche des joints de grains. Plus le débit augmente, plus la densité d'hématite augmente. La capacité de l'austénitique à résister ne dépend que de la capacité de la structure cristalline à compenser les pertes en chrome, ce qui est plus important dans le cas du 310SS. La morphologie de l'oxyde à un environnement de ($\text{O}_2 + 10\% \text{ H}_2\text{O}$) est la même que celle observée dans un environnement ($\text{O}_2 + 40\% \text{ H}_2\text{O}$), sauf que, dans ce dernier cas, des débits de caloporteur plus élevés sont requis pour engendrer un même degré de détérioration de l'alliage austénitique. Cela permet de souligner la performance de la couche chromine en cas de perte totale du caloporteur, vu que la volatilisation est inhibée.

2.4.2 Problématiques

Puisque l'alliage austénitique 310SS partage avec les solutions à base d'alumine un contenu équivalent en ^{56}Fe et en ^{52}Cr , alors les enjeux évoqués à la Section 2.2.2, à savoir le défi neutronique, radiologique de tritium et la marge en BDBA, sont aussi présents. Les défis économique et neutronique sont d'autant plus importants à cause de la présence de nickel. À cela, il faudrait ajouter le problème de volatilisation du chrome qui vient d'être discuté.

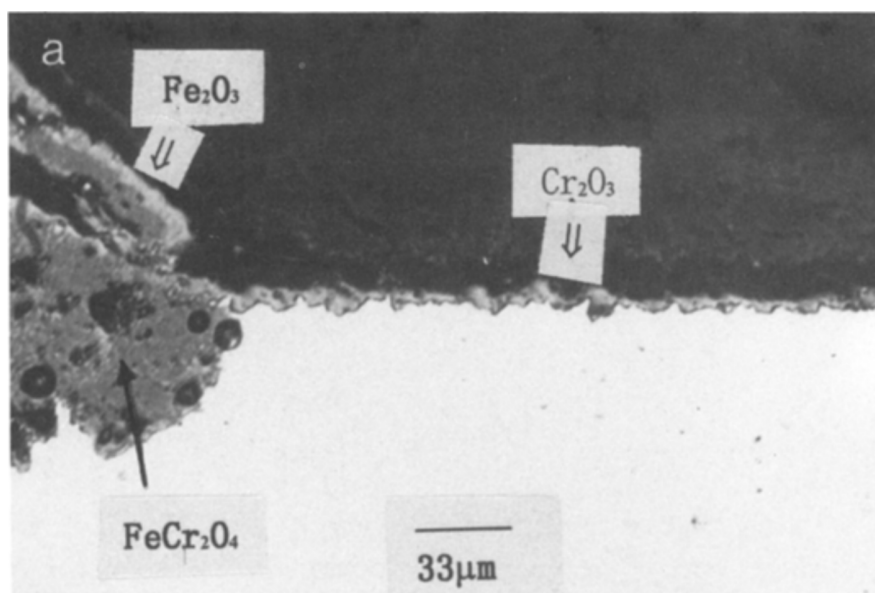


Figure 2.10 Couche chromine d'un alliage Fe-20at.%Cr exposée pendant 20 h, à une température de 1000 °C, dans une atmosphère ($O_2 + 10\% H_2O$) (Jianian *et al.*, 1997).

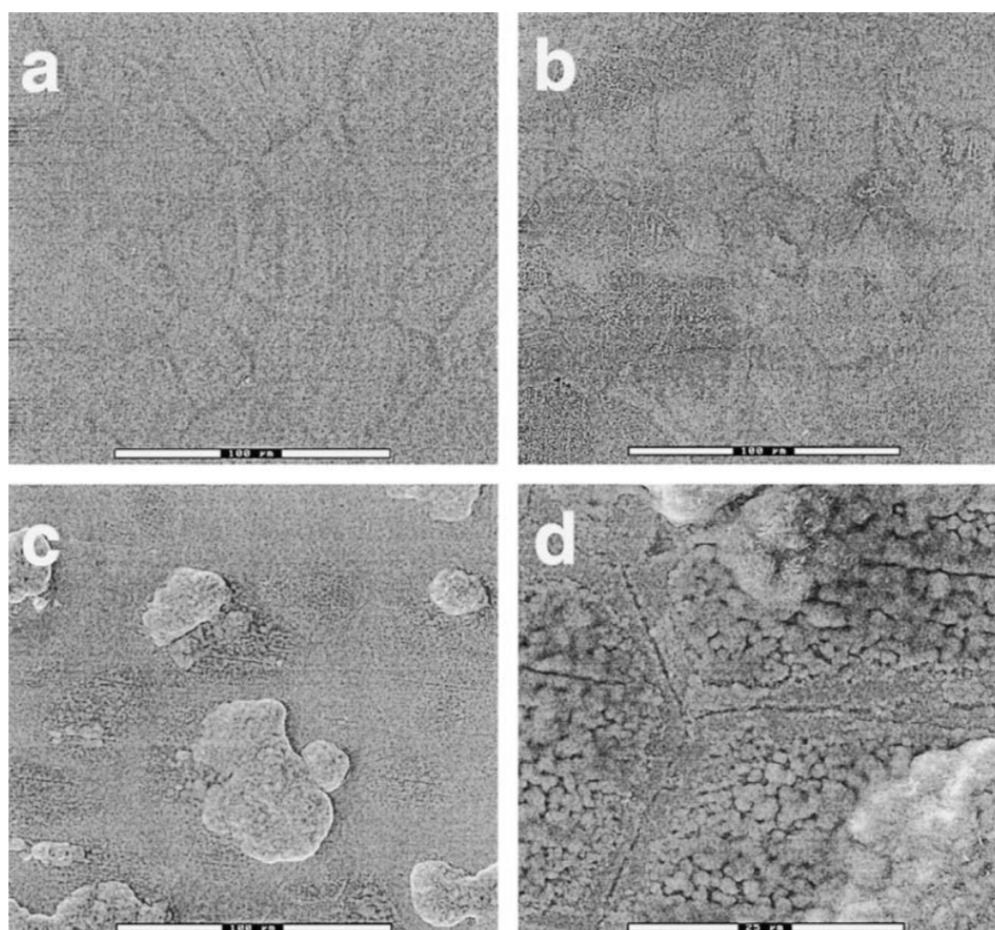


Figure 2.11 Micrographies MEBT de l'alliage 310SS après 168 h d'exposition à 600 °C dans une atmosphère (a). O_2 , (b). $O_2 + 40\% H_2O$: 200 ml/min (0.05 cm/s), (c). $O_2 + 40\% H_2O$: 2000 ml/min (5.0 cm/s) et (d). agrandissement de (c) (Asteman *et al.*, 2002).

CHAPITRE 3 ORGANISATION DU MÉMOIRE ET COHÉRENCE DES ARTICLES

Des événements majeurs ont peu à peu changé notre politique d'évaluation du risque nucléaire et bouleversé nos exigences en matière de sûreté des réacteurs thermiques. L'accident du Three Mile Island (28 mars, 1979) a montré à la communauté internationale que la limite temporelle d'exposition du zirconium à 1200 °C a été indubitablement sous-estimée et a complexifié le fardeau sur le système de refroidissement d'urgence. De ce fait, l'approche analytique déterministe, adoptée depuis la fin des années 1960, affirmant négligeable toute postulation d'incidents au dehors du cercle DBA, s'est vue chavirée et remplacée en urgence par une évaluation probabiliste des risques. Sur le plan pratique, les commissions de réglementation nucléaire ont clairement fait mention qu'un système de sûreté passif doit absolument prendre la relève et remplacer le système actif en place. Seulement la filière AP1000 des réacteurs à eau pressurisée de Westinghouse, la filière ESBWR des réacteurs à eau bouillante de General Electric-Hitachi et quelques petits réacteurs modulaires sur un total de ~493 réacteurs actuellement exploités et en cours de conception, ont pu tirer avantage de la mise en place de systèmes passifs. Les unités 1, 2 et 3 de la Centrale de Fukushima-Daiichi, respectivement mises en service en 1971, 1974 et 1976, font partie de la grande majorité des réacteurs sans systèmes passifs. Leurs fusions totales (11 Mars, 2011) a non seulement re-souligné l'urgence de l'adoption des systèmes passifs, mais a bouleversé les hypothèses admises lors de la quantification du risque opérationnel au cours de l'évaluation probabiliste des risques.

Un dénominateur commun à Three Mile Island et à Fukushima, sur lequel les États-Unis et le Canada s'intéressent depuis au moins 1955, est le problème d'oxydation exponentielle autocatalysée de la gaine au zirconium. En Septembre 2011, dans son rapport annuel de l'attribution des crédits aux Départements d'États, le Congrès des États-Unis, par son comité Sénatorial, urge la mise de toute priorité de subventions au développement de "*combustibles nucléaires tolérants aux accidents*". En Juin 2012, le Département d'Énergie des États-Unis reconnaît officiellement la possibilité de tests de tels crayons et assemblages par la fin de l'année 2022. En Septembre 2015, soit une année et demi avant que ne débute ce projet, une synthèse des résultats, émanants des nouvelles installations de l'IFEL ("*Irradiated Fuel Examination Laboratory*") d'Oak Ridge, évoque trois classes de couches oxydes susceptibles d'offrir, à haute pression et température, un changement de masse de spécimen 100 fois au-dessous de celui du Zircaloy et une réduction de la cinétique d'oxydation parabolique d'un facteur de 10^4 . La stabilité thermo-mécanique de ces nouveaux crayons, en milieu d'eau légère, à faibles et hauts burnups, en état stationnaire et transitoire, ainsi que la quantification de

marges gagnées en cas de scénarios BDBA tant prolongés que sévères, a été rendue publique en Octobre 2013. Les intentions du FDB (“*Fuel Development Branch*”) des Laboratoires Nucléaires Canadiens d’initier des programmes similaires nous ont incités à déployer l’expertise en calcul neutronique de l’École Polytechnique de Montréal en vue de quantifier l’impact de ce genre de combustible sur la filière CANDU-6 des réacteurs à eau lourde.

3.1 Évaluation du rendement neutronique pour la grappe à 37 crayons, synthèse de l’article : “*Neutronic analysis for accident tolerant cladding candidates in CANDU-6 reactors*”

Cet article, reproduit au chapitre 4, a été soumis le 14 Juillet 2017 à la revue “*Annals of Nuclear Energy*”, accepté le 8 Novembre 2017 et publié en Mars 2018, Vol. 113, pages 147-161. DRAGON5 est utilisé pour analyser l’évolution de la criticité de la grappe¹ standard à 37 crayons, lorsque gainée par les candidats ATFs, sur un cycle complet. Une méthodologie d’enrichissement en ^{235}U et un critère de convergence sont développés et adoptés lorsque nécessaires. SERPENT1.19 est utilisé comme biais de validation du calcul déterministe. L’accumulation de poison, d’actinides et de produits de fission est suivie à chaque pas de burnup. Les taux d’absorptions des gaines par rapport à la pastille UO_2 sont étudiés dans la zone thermique, épithermique et rapide. Le degré du durcissement du flux neutronique est quantifié dans le combustible, la gaine et le modérateur. Un raffinement des conditions de discrétisations et une considération de l’inhomogénéité de la pastille ont permis une étude fine du profil radial du taux de production de neutron thermiques et de ^{239}Pu au sein de la pastille. Un recours à une optimisation de la géométrie du crayon est proposée en vue de diminuer les coûts en enrichissement et de diminuer l’effet du durcissement du flux neutronique. L’augmentation du volume du caloporteur, du volume de la pastille et du volume de l’espace d’hélium sont les trois schémas d’optimisation étudiés pour contrer la pénalité des gaines. Des scénarios d’accidents, tant modérés que sévères, sont simulés en perturbant la température du caloporteur, du modérateur et du combustible, ainsi que les masses volumiques du caloporteur et du modérateur, à chaque pas de burnup.

3.2 Simulation neutronique de l’opération du cœur CANDU-6, synthèse de l’article : “*CANDU-6 operations simulations using accident tolerant cladding candidates*”

Cette article, reproduit au chapitre 5, a été soumis le 8 Mai 2018 à la revue “*Annals of Nuclear Energy*”. Le rapport des examinateurs de la revue n’a pas encore été reçu. DRAGON5 est

1. Notez que l’hélium a été utilisé entre le tube de calandre et le tube de force. Les réacteurs CANDUs utilisent actuellement le dioxyde de carbone.

utilisé pour générer la base de données de la grappe. L'effet des mécanismes de régulation, des mécanismes d'arrêt d'urgence et des mécanismes de structure est pris en compte par une série de bases de données contenant les sections efficaces incrémentales. Le traitement de ces bases de données et l'interpolation des propriétés nucléaires pour chaque région du cœur, à chaque pas de burnup, est effectuée par le code de diffusion DONJON5. Les mêmes niveaux d'enrichissement (que ceux de l'article précédent) sont introduits au niveau de toutes les grappes. La chaîne de calcul DRAGON5-DONJON5 est appelée d'une manière itérative pour évaluer les besoins en poison neutronique et contrebalancer l'excès de réactivité du début du cycle. L'évolution de la puissance maximale de canal et de grappe est suivie à chaque pas de burnup et comparée aux limites fixées pour l'exploitation du CANDU-6. Le durcissement du flux est quantifié et étudié au niveau du cœur, à différentes hauteurs et différentes périodes précédant le début du processus de rechargement. L'effet des barres de régulation liquides et solides sur l'aplanissement du flux est étudié pour chaque système. L'effet du durcissement sur le profil radial et axial des puissances de canal et de grappe est aussi quantifié. Un schéma de rechargement à 8 grappes basé sur le modèle d'âge du canal, avec une fréquence adéquate, est testé pour tous les systèmes à l'étude. Un événement de perte totale et soudaine des mécanismes de contrôle de réactivité est simulé à deux périodes du cycle. Un retour à la normale, tant progressif qu'instantané, est présenté². La perturbation des propriétés locales des grappes et globales du cœur a permis de comparer les réponses des différents systèmes pour un large spectre DBA.

Notez que dans ces articles ainsi que dans le reste du mémoire, nous avons exprimé indifféremment les différences de facteur de multiplication en "mk" et en "pcm" sachant que :

$$\Delta k_{\text{eff}} = 10^3 \times (k_1 - k_2) \text{ [mk]}$$

$$\Delta k_{\text{eff}} = 10^5 \times (k_1 - k_2) \text{ [pcm]}$$

2. L'analyse de l'événement de perte des mécanismes de contrôle de réactivité, ainsi que leurs récupérations, est présentée dans une perspective de calculs neutroniques et non dans un cadre de calcul de cinétique des réacteurs.

CHAPITRE 4 ARTICLE 1 : NEUTRONIC ANALYSIS FOR ACCIDENT TOLERANT CLADDING CANDIDATES IN CANDU-6 REACTORS

- Authors: Ahmed Naceur and Guy Marleau.
- Submitted to the Journal “*Annals of Nuclear Energy*” in July 14th 2017. Accepted for publication in November 8th 2017.

4.1 Abstract

The neutronic penalty and advantages are quantified for potential accident tolerant claddings in a CANDU-6 (Canada Deuterium Uranium) reactor. Ferritic-based alloy (FeCrAl and APMT), steel-based alloy (304SS and 310SS) and silicon carbide (SiC) claddings are compared with Zircaloy-II. High thermal capture in nickel-59 and iron-56 imply a neutronic penalty in iron and steel-based bundles. A minimum enrichment of 1.0% and 1.1% is required for ferritic and steel-based claddings, respectively, to achieve the CANDU-6 burnup average criticality. An average increase of 0.35% in reactivity is introduced when SiC is considered, while keeping a natural enrichment condition. Average thermal neutron absorption rate is found to be 203, 8 and 6 times higher in UO₂ pellets than in silica, iron and steel-based claddings, respectively. A spectral hardening is observed in fuel, cladding and coolant for all enriched cells. Neutron flux is 30.5% higher at 0.0253 eV in SiC and Zr bundles. For FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS, less ²³⁹Pu is produced during all fuel residence time and a minimum of 50% more ¹³⁵Xe poison is being produced at equilibrium. As well, a minimum of 60% more ²³⁵U is left at end-of-life. For bundles clad with SiC and Zr, 7.6% higher fission rates are found on the pellet periphery. Decreasing the cladding thickness by 200 μ m made it possible to satisfy the criticality requirements for all claddings with an enrichment below 1%. Moderator and coolant temperature coefficients are found higher in SiC and Zr bundles. At mid-burnup, the Doppler effect and the voiding effect are higher in FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS clad cells.

4.2 Introduction

Following the station blackout (SBO) accident at three units of the Japanese Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, caused by the 2011 Tohoku earthquake and tsunami, fuel system improvement has become a subject of intense concern ([Burns *et al.*, 2012](#)). The new strategy is to develop a fuel pin that can tolerate severe accident scenarios. Accident Tolerant

Fuels (ATF) have to provide significant improvements in safety response, resulting from a loss in cooling capacity, while maintaining a good operational neutronic performance during normal conditions. Substantially improved safety responses have to cover the entire spectrum of design basis (DB) and beyond design basis (BDB) accidents (Ott *et al.*, 2014). The accident tolerant fuel system should suppress or reduce the steam-cladding oxidation rate, minimize the additional heat generation, enhance hydrogen sequestration when generated, improve fuel and cladding retention of fission products and maintain core coolability (Zinkle *et al.*, 2014). The new system should exhibit a good structural integrity at the UO_2 /Zr rod burst point expected in the temperature range $[700 - 1200]^\circ\text{C}$. By delaying the cladding ballooning and burst point and reducing its specific mass change at 1200°C in steam condition, ATF concepts aim to delay hydrogen accumulation from proceeding (Zinkle *et al.*, 2014).

The first and the easiest approach to develop ATF is to introduce some modifications in existing Zircaloy alloy in order to improve the material dimensional performance and oxidation kinetics. Sixty years of Zr alloy development suggest that such investigations are not able to produce significant differences in BDB response (Zinkle *et al.*, 2014). The major problems affecting loss of coolant accident (LOCA), reactivity initiated accident (RIA) and SBO are the Zr hydride formation at high burnups and the Zr heat production by oxidation above 1200°C , that will surpass radioactive decay and increase substantially the heat removal requirement (Terrani *et al.*, 2014c). The second approach is to consider a markedly different non-zirconium cladding with high performance in oxidation resistance. The third approach is to develop an alternative fuel form to the current ceramic oxide uranium pellet with one or more additional barriers to fission products retention (Terrani *et al.*, 2012b). This paper focuses on the second approach by choosing among ATF cladding concepts specific iron-based alloys (FeCrAl and APMT), steel-based alloys (304SS and 310SS) and silica (SiC) options. This work pursues George *et al.* (2015) analysis on PWR for a CANDU-6 reactor.

A number of experimental investigations were performed by Pint *et al.* (2013) at 800 - 1500°C in 1-20 bar steam condition and H_2 - H_2O environments and they all emphasized the performance of these claddings. The basic FeCrAl alloy appears a promising oxidation resistant material by forming a protective aluminium-rich oxide at 800°C , 1000°C (at 10.3 bar) and 1200°C . The protective alumina scale was resistant up to 1475°C . Y and Hf additions in Kanthal alloy APMT (Advanced Powder Metallurgy Tube) shows an excellent alumina scale adhesion (a solid diffusion barrier) after 48 hours at 1200°C and 8 hours at 1350°C . Conventional 304-type stainless steel cladding is more resistant in steam condition than the current Zircaloy to ballooning and burst points but not at 1200°C . Also because of the scale spallation, a significant mass change is observed at 1000°C . The study of this sheath will be maintained for its high burnup capability (Uwaba *et al.*, 2011) and irradiation performance

in PWRs before 1960 (George *et al.*, 2015). The 304SS poor relative oxidation performance can be mitigated by increasing its chromium and/or nickel contents (as in 310SS). Austenitic type 310 stainless steel forms a thin chromia, showing a good protective behavior at 1200°C in steam condition. Silicone carbide (SiC) demonstrates exceptional oxidation resistance and an excellent integrity in high-pressure and temperature steam–H₂ environments. SiC-based bundle is difficult to fabricate, shows the formation of volatile hydroxides and low thermal conductivity when irradiated.

The present work compares the neutronic performance of these candidates with the baseline zirconium alloy (Zr-II) bundle, using burnup calculations, isotope depletion analyses, absorption rate ratios, spectral and spatial self-shielding analysis, plutonium radial profile and reactivity perturbations. It also allows us to answer the question whether enrichment is necessary for an implementation in CANDU-6 reactors and if these enrichment levels could be avoided by a pin geometry optimization. In Section 4.3, we present the CANDU-6 lattice modeling, the candidate cladding parameters and the enrichment methodology. In Section 4.4, we analyze the cell behavior under normal, optimized and accidental conditions. In section 4.5, we conclude and highlight future work.

4.3 Methodology

4.3.1 CANDU-6 lattice modeling and parameters

A typical CANDU-6 cell geometry consists of a fuel bundle surrounded by two concentric pressure and calandria tubes, where the gap between the inner and the outer cylinder is filled with helium gas. This gas is inserted to ensure insulation between the hot D₂O coolant and the cold moderator. The calandria tube is surrounded by a D₂O moderator. For the purpose of this study, a standard fuel bundle was used and is illustrated in Fig. 4.1. It consists of 37 fuel pins arranged in an annular ring formation (1, 6, 12 and 18) for a lattice pitch of 28.575 cm. Every fuel pin consists of 30 natural uranium oxide (UO₂) pellets that are stacked inside a zirconium alloy cladding tube. A similar type of alloy is used for the calandria tube and a Zr-Nb alloy for the pressure tube.

The heavy water moderator purity is assumed to be 99.92 at.%. The coolant purity is 99.3 at.%. The data relative to the reference cell model are listed in Table 4.1, with IR and OR being the inner and the outer radii, respectively. All fuel elements have the same radii, the same isotopic compositions, the same density and temperature.

We introduced four identical mixtures for each rod to take into account different burnup levels that might occur depending on how far the pins are from the moderator. The pellet-

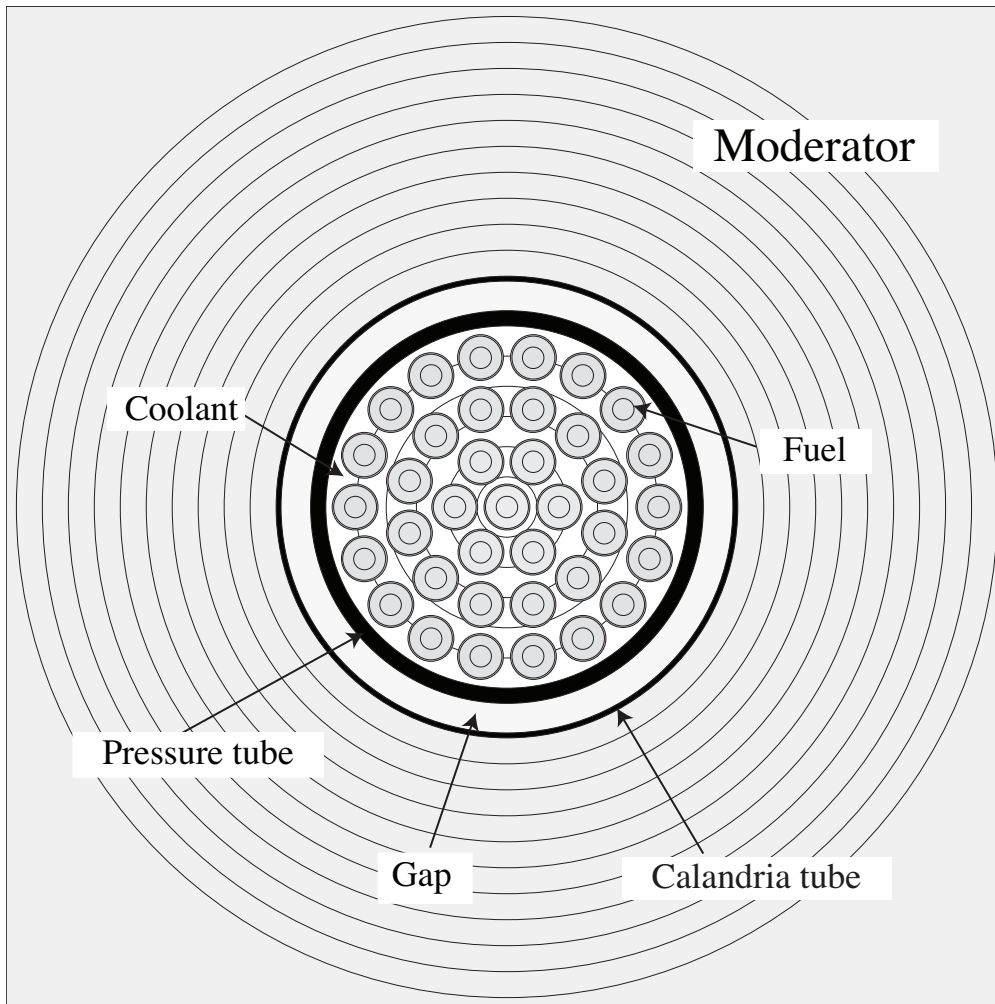


Figure 4.1 Standard 37-element bundle cell.

Table 4.1 CANDU-6 cell parameters for $[\text{UO}_2\text{-Zr}]$ fuel.

Structure	Material	Density [g/cm ³]	T [K]	IR [cm]	OR [cm]
Coolant	D ₂ O	0.8121	560.66	0.0000	5.1689
Pressure Tube	Zr-Nb	6.5700	560.66	5.1689	5.6032
Helium Gap	⁴ He	0.0014	345.66	5.6032	6.4478
Calandria Tube	Zr-II	6.4400	345.66	6.4478	6.5875
Moderator	D ₂ O	1.0829	345.66	6.5875	14.288
Fuel	UO ₂	10.438	941.29	0.0000	0.6122
Cladding	Zr-II	6.4400	560.66	0.6122	0.6540

cladding gap and fuel element dimensions will be adjusted only in the case of cycle reactivity improvement. The four fuel cluster rings, denoted Ring (i) in Table 4.2, contain respectively n_i pins located on a circle of a radius r_i with θ_i the angular position of the first pin. The other pins are distributed uniformly on the circle.

Table 4.2 CANDU-6 clusters geometry properties.

Ring (i)	n_i	r_i [cm]	θ_i [rad]
1	1	0.0000	0.0000
2	6	1.4885	0.0000
3	12	2.8755	0.261799
4	18	4.3305	0.0000

4.3.2 Claddings parameters

Table 4.3 lists the cladding materials used for fuel reactivity calculations, densities (in g/cm³) and detailed isotopic compositions (in weight percentage). In our study, the baseline zirconium alloy (Zircaloy-II) is compared with five different candidates: silicon carbide (SiC), ferritic iron chromium aluminum alloy (FeCrAl), 304 stainless steel (304SS), austenitic type 310 (310SS) and kanthal advanced powder metallurgical (APMT). These claddings were considered because of their sufficient oxidation resistance at a significantly higher melting point than for Zircaloy. For conventional stainless steel (304SS), increasing the Cr and Ni contents (as 25Cr-20Ni in 310SS) provides a good steam oxidation resistance at 1200°C. Fig. 4.2

Table 4.3 Isotopic compositions (wt.%) of candidate claddings materials.

Material	ρ_v [g/cm ³]	⁵⁶ Fe	⁵⁸ Ni	⁵² Cr	^{nat} B	⁹¹ Zr	²⁸ Si	¹² C	²⁷ Al	⁵⁹ Ni	⁵⁵ Mn	⁹⁶ Mo	¹⁷⁹ Hf
Zircaloy-II	6.44	0.16	0.06	0.11	0.00031	99.71	-	-	-	-	-	-	-
SiC	2.58	-	-	-	-	-	70.08	29.92	-	-	-	-	-
FeCrAl	7.10	75.0	-	20.0	-	-	-	-	5.0	-	-	-	-
304SS	7.90	71.35	-	18.9	-	-	0.42	-	-	8.35	0.70	0.27	-
310SS	8.03	52.55	-	25.22	-	-	0.7	-	-	19.51	1.9	0.122	-
APMT	7.30	69.79	-	21.60	-	0.10	0.53	-	4.9	-	-	2.92	0.16

compares the macroscopic capture cross sections (Σ_c) of cladding materials. As one can see, in the thermal region ($E < 0.625$ eV), we distinguish two different classes of response. The first class of response correspond to that of Zr and SiC. FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS form the second class of response. The latter is characterized by a high neutron capture cross section compared with Zr and SiC responses. This trend is mainly due to the fact that

these materials contain at least 52% iron, a material that has an absorption cross section in the thermal groups of the order of 10 barns. Stainless steel claddings have a larger thermal neutron absorption due to the captures of nickel-59. 310SS has more thermal neutrons captures because the nickel-59 content is 11% higher than in 304SS. The two APMT peaks that are seen in the epithermal zone are due to the presence of ^{96}Mo . However, as expected, nuclei having magic numbers of neutrons ($^{91}_{40}\text{Zr}$) or a doubly semi-magic number ($^{28}_{14}\text{Si}$) show low tendency in capturing neutrons (Glasstone et Sesonske, 2012; Cottingham et Greenwood, 2002). For thermal, epithermal and fast neutrons, SiC cladding is more transparent than the baseline zirconium alloy. In normal conditions, the neutrons are slowed down in the moderator and then penetrate the neighboring bundles. Before initiating the next fission, they must succeed in crossing the sheath thickness. Thus, despite their better oxidation resistance, claddings with higher capture properties have a pronounced impact on the neutron balance.

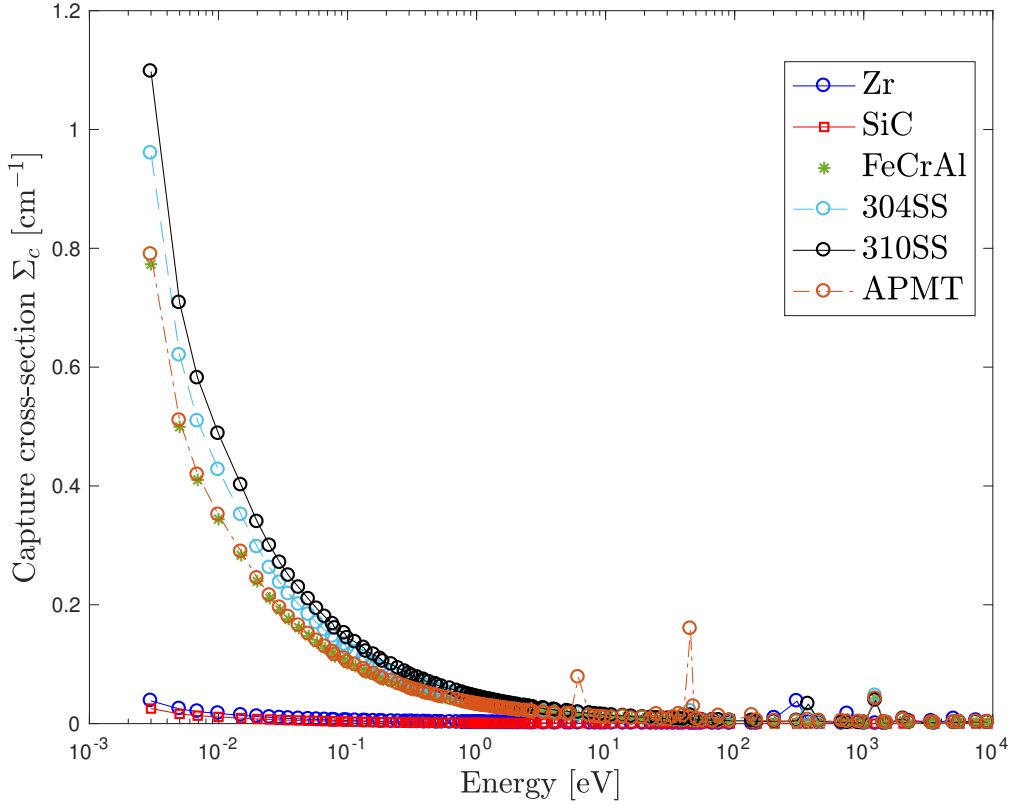


Figure 4.2 Macroscopic capture cross section.

4.3.3 Enrichment and geometry requirements

The five cladding materials react differently in the thermal and epithermal zones. An enrichment in ^{235}U will be required to compensate the different neutronic losses. The criteria suggested to determine the adequate enrichment for a cladding is that the fuel must have at least the fuel residence time Δt_c of the reference CANDU bundle. For each enriched cell, the effective neutron multiplication factor (\bar{k}_{eff}) average over the complete cycle must be equal to the effective reference $[\text{UO}_2, \text{Zr}]$ criticality ($\bar{k}_{\text{eff,Zr}}$) without poison (St-Aubin et Marleau, 2015a).

$$\bar{k}_{\text{eff}} = \frac{1}{\Delta t_c} \int_0^{\Delta t_c} k_{\text{eff}}(t) dt = \bar{k}_{\text{eff,Zr}} . \quad (4.1)$$

The fuel residence time is the reactor calendar time between the insertion of a single batch of fuel in the core and its extraction (Rouben, 2003). One alternative to using such a simple time averaged multiplication factor is to consider the following method. One first evaluates the time averaged cell homogenized two group cross sections and use them to calculate the k_{eff} solution to the equivalent homogeneous transport problem. This method is more coherent with how full reactor calculations are performed. However the two multiplication constants only differ by about 0.3 mk and leads to a maximum change in initial fuel enrichment of 0.001% which can be neglected for this study. For the CANDU-6 reactor, the fuel residence time is the same as the cycle operation length and 300 days is considered for a complete burnup cycle at a constant power of 31.9713 kW/kg (exit burnup of 9.6 GW-day/tonne).

For natural and optimized enrichment, three fuel rod configurations are also considered. In the first one, the pellet dimension is kept constant and the cladding thickness ϵ is reduced by decreasing the external radius (\mathcal{C}_1 and \mathcal{C}_4). In the second, ϵ is reduced by increasing the pellet external radius (\mathcal{C}_2 and \mathcal{C}_5). In the third arrangement, the cladding thickness is reduced by increasing the void gap and keeping the pellet dimensions fixed (\mathcal{C}_3 and \mathcal{C}_6). In all cases, ϵ is reduced by 200 μm . Table 4.4 provides the various geometries studied for reactivity improvement. The fuel density is kept at 10.4375 g/cm³ and the cladding densities for the different configurations are provided in Table 4.3. Analyses are performed for all cladding materials for Cases \mathcal{C}_0 to \mathcal{C}_6 . Here, e_{UO_2} represents the uranium enrichment with $e_{\text{natU}} = 0.71140$ wt.% for natural uranium and e_{enrU} the optimized fuel enrichment. \mathcal{C}_0 (ref.) represents the actual CANDU-6 fuel pin geometry with optimized enrichment (e_{enrU}), if needed.

Table 4.4 Various fuel pin configurations used for reactivity improvement.

Case	e_{UO_2}	Pellet OR [cm]	Gap thickness [μm]	Clad OR [cm]	ϵ [μm]
\mathcal{C}_0 (ref.)	e_{enrU}	0.61220	0.0000	0.65400	418
\mathcal{C}_1	e_{enrU}	0.61220	0.0000	0.63400	218
\mathcal{C}_2	e_{enrU}	0.63220	0.0000	0.65400	218
\mathcal{C}_3	e_{enrU}	0.61220	200.00	0.65400	218
\mathcal{C}_4	e_{natU}	0.61220	0.0000	0.63400	218
\mathcal{C}_5	e_{natU}	0.63220	0.0000	0.65400	218
\mathcal{C}_6	e_{natU}	0.61220	200.00	0.65400	218

4.3.4 Simulation strategy

Computation of the bare cell lattice properties constitutes the first stage of CANDU reactor physics simulations. The cell includes fuel elements, coolant, pressure tube, helium gap, calandria tube and moderator, but excludes all interstitial reactivity devices (Varin *et al.*, 2004). Here, our analysis is based on the 3D lattice transport-theory code DRAGON5 (Marleau *et al.*, 2018), which is part of the Industry Standard Tool-set (IST) of Codes for CANDU reactor core design and analysis (Rouben, 2002). The transport calculation in DRAGON were performed using the collision probability (CP) technique (Marleau *et al.*, 1992).

Neutron cross sections are first extracted from a multigroup library. In this study, we used a 172-group WIMSD4 format library, based on JEFF 3.1 evaluated nuclear data (Koning *et al.*, 2006). The two-dimensional Cartesian cell of Fig. 4.1 with reflective boundary conditions is considered. Normal CANDU-6 operation conditions (i.e. pressures, temperatures and densities) are assumed for all cells. For every zone, the CP integration lines are generated using the NXT tracking module (Marleau, 2005). At every burnup step, the cross sections are corrected by the generalized Stamm'ler resonance self-shielding approach (Hébert et Marleau, 1991). Tracking lengths are recovered by the ASM algorithm and the collision probability matrix is produced. The transport equation is finally solved without leakage. Then, the converged multi-group flux map is obtained. Two groups burnup dependent (\mathcal{B}) reaction rates, diffusion coefficients $D^g(\mathcal{B})$, condensed and homogenized macroscopic cross sections $\Sigma_x^g(\mathcal{B})$ are then produced for cell analysis and subsequent core calculations. During burnup calculation, the energy released outside the fuel is neglected. Yet, the clad composition variation due to neutron activation is taken into account. Our simulation strategy was verified with SERPENT Monte-Carlo code (Leppänen, 2013) using 10,000 neutrons per cycle, 2000 active batches and 200 inactive batches. As one can see in Table 4.5, the agreement between DRAGON and SERPENT is very good with differences in $k_{\text{eff}}(t_0)$ that remain below 2 mk.

4.4 Results

4.4.1 Depletion k_{eff} results

For natural enrichment (e_{natU}), Fig. 4.3 shows the evolution of the effective multiplication factor during one operation cycle. The two types of behavior previously observed for Σ_c responses (Fig. 4.2) are also noticed in the k_{eff} pattern. The same order of responses from the most to the least transparent material to thermal neutrons is reproduced. At begin of cycle (BOC), $t_0 = 0$ days, the bundle contains only fresh fuel. As the fuel depletes ($t > t_0$), different changes occur in fuel isotopic compositions depending on the cladding absorption cross section. Neutron radiative capture in ^{238}U lead immediately to the production of ^{239}U which, after a β^- decay (24 min), produces neptunium. The ^{239}Pu production is not immediate. There is a delay associated with ^{239}Np decay, which has a half-life of about 56 hours. Hence, the rise observed on the 5th day is caused by the ^{239}Pu positive contribution. For e_{natU} condition, all cells display a ^{239}Pu peak, but for FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS cladded fuels, the cell is initially and remains subcritical. We conclude that a chain reaction

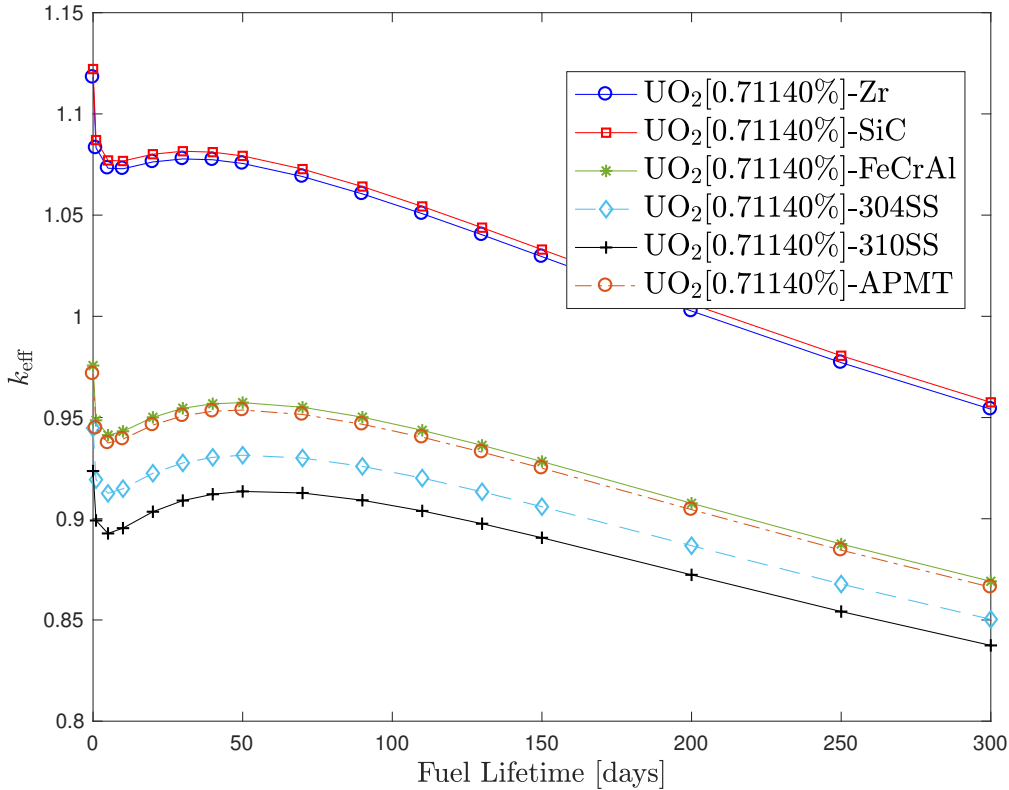


Figure 4.3 Effective multiplication factor vs. fuel residence time in a standard CANDU-6 natural cell lattice.

cannot be sustained and an increased enrichment is necessary.

To increase the cell reactivity, several iterations were needed to select the adequate enrichment. A convergence criterion of 10^{-2} pcm is selected. Fig. 4.4 depicts the dependence of k_{eff} on time, assuming the fuel enrichment is selected in such a way that Equation. 4.1 is satisfied for each cladding material. Fig. 4.5 shows the difference in the k_{eff} between the alternate cladding material and Zircaloy. Table 4.5 presents the converged results when the criticality criteria is satisfied for all cells. A higher neutron absorption probability implies a higher enrichment. At BOC, ^{235}U is the only fissile nuclei present in the fuel. For this reason, as the cell is more enriched, the initial supercriticality is found greater at this moment. At each time step, ^{235}U isotope proportions in enriched bundles is larger than for natural uranium fueled cells. Thermal absorption probability in this fissile isotope is 100 times larger than capture probabilities in ^{238}U . In other words, at each burnup step, ^{235}U fission is more plausible than ^{239}Pu production. This conclusion can be confirmed by plutonium and uranium isotopes inventory evolution shown in Fig. 4.6. Consequently, the ^{239}Pu peak disappears for enriched fuels (see Fig. 4.4) and k_{eff} decreases more quickly. The supercriticality of the ferritic sheath cells surpasses the silicon cell up to the 70th day and continues to dominate the reference cell criticality until the 110th day. Then, the multiplication constant for ferretic clad cells becomes lower than that observed for cells clad with Zr and SiC (natural uranium fuel). This behavior can be more easily seen in Fig. 4.5. After these burnup periods, the ^{235}U fission rate is no longer able to compensate the neutronic penalty. The more transparent SiC cladding produced a positive 0.35% $\Delta\bar{k}_{\text{eff}}$ during all fuel residence period. A higher boron concentration will be needed for SiC bundle criticality control. Fig. 4.7 depicts xenon and ruthenium accumulation as a function of the fuel residence time. As one can see, the concentration of xenon decreases regularly after having reached a maximum (time between 50 and 100 days, depending on the fuel enrichment). This is expected even for high-flux reactor where the xenon concentration is proportional to

$$\frac{\sum_j N_j(t)\sigma_{j,f}}{\sigma_{Xe,a}}$$

(one group microscopic cross sections assumed constant), with N_j and $\sigma_{j,f}$, respectively, the concentration and the fission microscopic cross section of the fissile isotope j . $\sigma_{Xe,a}$ is the ^{135}Xe absorption microscopic cross section. Thus changes in the fissile isotopes concentration will affect the xenon production rate and its concentration in the fuel. Initially, the loss of ^{235}U is completely compensated by ^{239}Pu creation with its larger thermal fission cross section. As the fuel reaches higher burnups, the concentration of xenon decreases because the global concentration of fissile isotopes leads to a smaller macroscopic fission cross section. Table 4.6

lists the time average fuel absorption rate over cladding absorption rate for slow, epithermal and fast neutrons. These results emphasize the cladding role seen in k_{eff} depletion results. While the slow neutron absorption rate is 203 times more pronounced in UO_2 pellets than in SiC cladding, this ratio is reduced to 136, 8.1, 8.0, 6.8 and 6.2, respectively, for Zr, FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS claddings.

Table 4.5 Cycle converged mean multiplication factor.

	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
$k_{\text{eff}}(t_0, e_{\text{nat U}})$	1.118047	1.122149	0.975665	0.944769	0.923572	0.971555
$\bar{k}_{\text{eff}}(e_{\text{nat U}})$	1.026239	1.029790	0.922744	0.899505	0.884282	0.919418
e_{UO_2} [%]	0.711400	0.711400	1.049840	1.132900	1.192371	1.061905
$\hat{k}_{\text{eff}}(e_{\text{UO}_2})$	1.026239	1.029790	1.026239	1.026239	1.026239	1.026239
$\Delta k_{\text{eff}}(t_0)$ [DRAGON-SERPENT] [pcm]	50.7	167.9	54.1	81.9	34.2	90.0

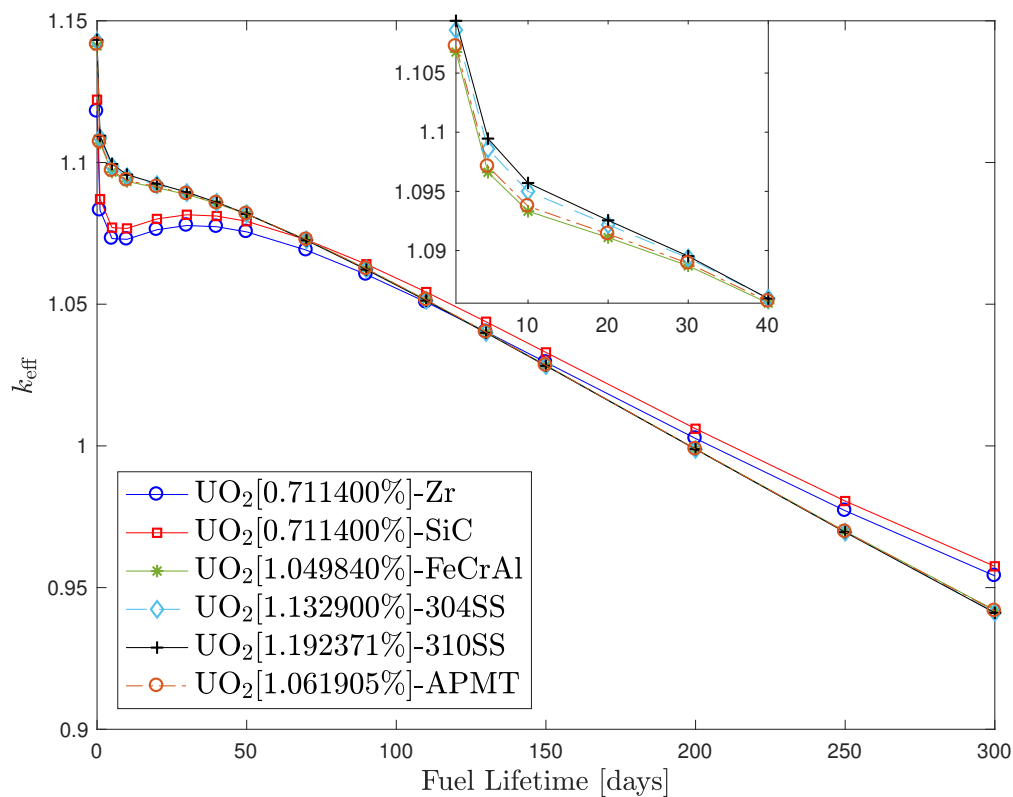


Figure 4.4 Effective multiplication factor vs. fuel residence time for various cladding candidates in a standard CANDU-6 cell lattice.

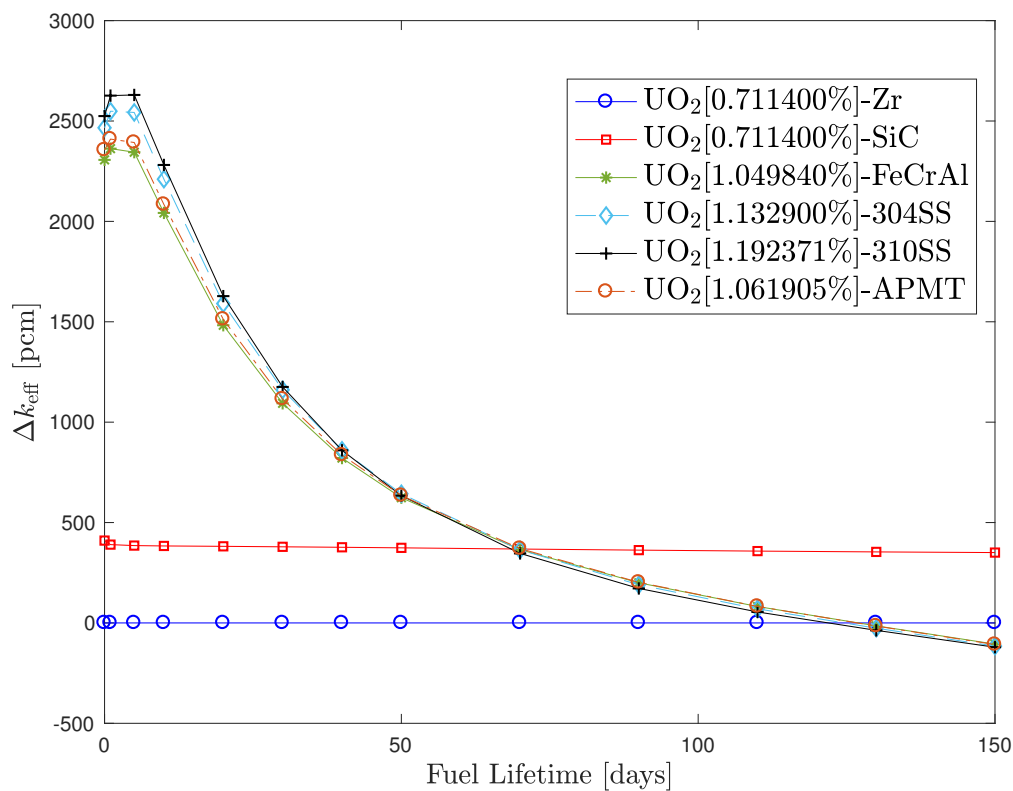


Figure 4.5 Δk_{eff} from Zircaloy-II vs. fuel residence time for various cladding candidates in a standard CANDU-6 cell lattice.

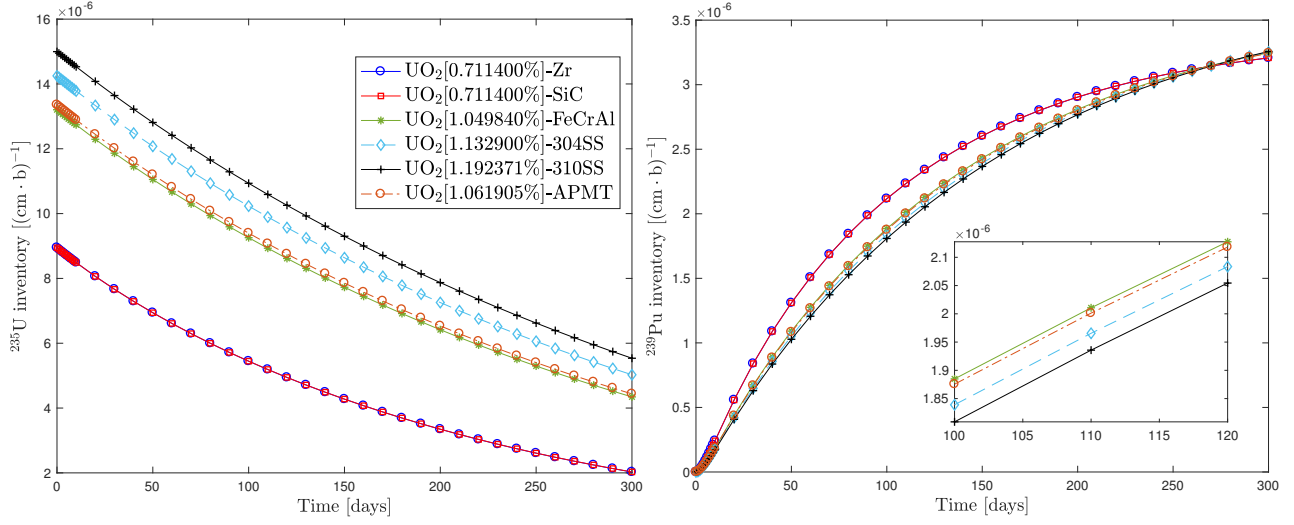


Figure 4.6 ^{235}U (left) and ^{239}Pu (right) inventories during fuel depletion.

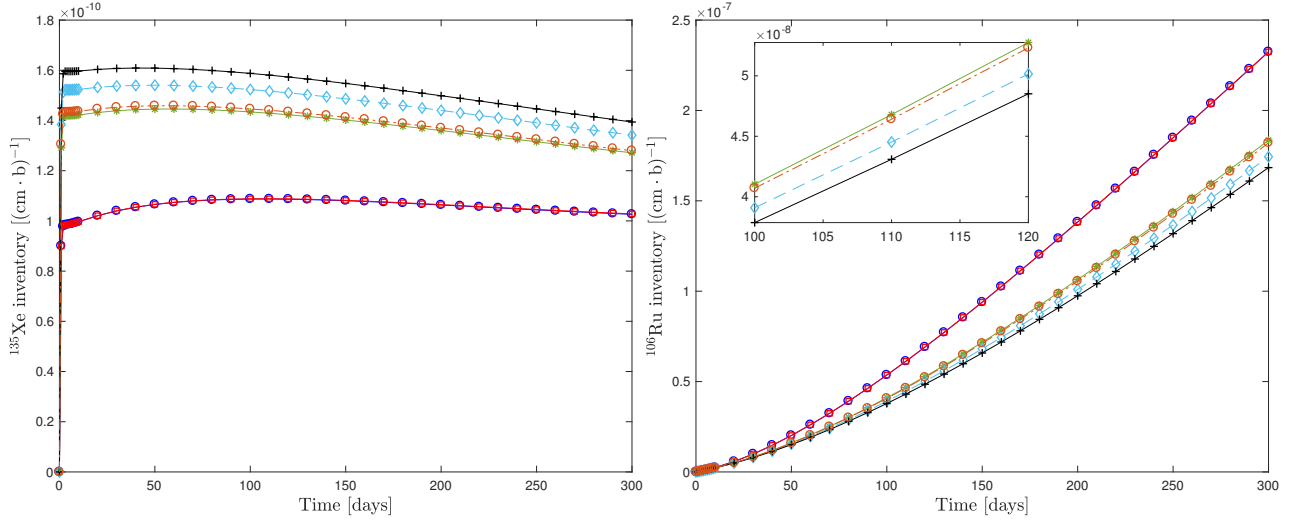


Figure 4.7 ^{135}Xe (left) and ^{106}Ru (right) inventories during fuel depletion.

Table 4.6 Time average fuel absorption rate divided by cladding absorption rate for slow, epithermal and fast neutrons.

	Slow	Epithermal	Fast
UO ₂ /SiC	203.7	1457.7	271.8
UO ₂ /Zr	134.9	78.6	90.6
UO ₂ /FeCrAl	8.1	75.6	96.8
UO ₂ /APMT	8.0	35.4	81.3
UO ₂ /304SS	6.8	56.6	58.3
UO ₂ /310SS	6.2	49.6	40.8

4.4.2 Neutron spectrum

At each burnup step, cross sections were homogenized over fuel, cladding and moderator mixtures. The normalized flux (ϕ_m^g) per unit fission was produced at each of the 172 energy groups for each time step. Fig. 4.8 compares the fuel regions homogenized lethargy flux spectra (normalized flux per unit lethargy) at the 150th day (middle of cycle or MOC). The

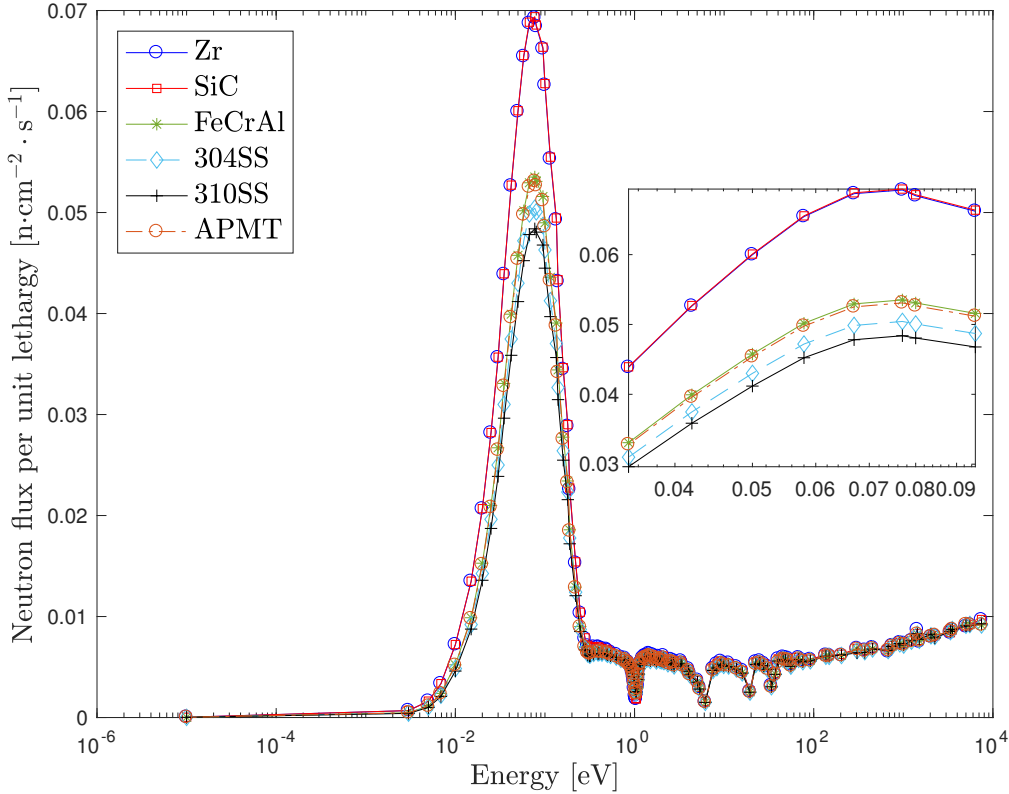


Figure 4.8 Neutron flux spectrum at MOC.

two category behavior discussed before can only be differentiated in the thermal region. More neutron absorbing materials allow fewer thermal neutrons to reach the fuel. Therefore thermal peaks are staggered (lower for FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS), while fast peaks are superimposed. The fast neutron fraction in enriched cells increases, which means a hardened neutron flux spectrum. This spectral hardening was found at every depletion step in fuel, cladding and moderator mixtures. For 0.0253eV, ϕ_m^g peak is 30.5% higher in SiC and Zr fuel pins than in FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS pins. Thus, the ^{239}Pu production rate is larger in Zr and SiC cells (as shown in Fig. 4.6, *right*). Consequently, in the case of spectral hardening, there is less accumulation of actinides and fission products (see ^{106}Ru inventory in Fig. 4.7, *right*) and a minimum of 50% more ^{135}Xe poison inventory (see Fig. 4.7,

left). Despite a higher enrichment, the system reactivity is more quickly reduced. The same phenomenon was observed by George *et al.* (2015) for the PWR reactors, while introducing the same claddings, and by Chen et Yuan (2017) for the LWR, while examining a new fuel cladding combination ($\text{U}_3\text{Si}_2\text{-FeCrAl}$).

4.4.3 Radial profile study

Fission rate, spatial and temporal evolution and fissile plutonium production near the pellet periphery (the so-called “*rim effect*”) could be affected when the cladding is changed (Piro *et al.*, 2013). The fuel utilization factor will differ radially in the pellet. As a result, pin safety, performance and microstructure evolution could be affected. To analyze radial performance, each fuel pellet was divided into 20 equal area rings. Neutron flux was homogenized over pellets’ subregions, cladding and coolant. Fission rates, power density and fissile isotopic production were computed at BOC, MOC and EOC (end of cycle) for fast, epithermal and slow range. Fig. 4.9 illustrates the fission neutron production rate ($\nu\Sigma_f\phi_{\text{int}}$) by thermal neutrons as a function of the radial position in the pin at MOC, where ϕ_{int} (cm/s) is the volume-integrated thermal flux. After moderation, thermal neutrons penetrate the bundle. By successfully passing through the sheath, they are largely captured in the fuel pin outer regions. Fissile nuclei in the interior regions are exposed to a much smaller fluence. Consequently, the fission rate is larger as we approach the pellet-sheath interface. All cladding materials show radially the same fission rate profile. Fission rate is 7.6% smaller in FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS because of their spectral hardening. A steeper rise in the fission rates as a function of the radial position means a clad material with lower capture cross section.

The optimum use of both fissile and fertile materials is an important aspect in CANDU reactors. The breeding ratio (BR) describes the efficiency with which fuel is being utilized. When the number of fissile nuclei produced exceeds the number of fissile nuclei consumed, BR is superior to unity. A higher conversion ratio is required due to the fact that the reactor’s decline in reactivity is slowed down by efficient captures in fertile nuclei as ^{235}U is consumed (Glasstone et Sesonke, 2012). Thermal and resonance neutron captures in ^{238}U produce ^{239}Pu . In order to study the plutonium spatial distribution, 20 identical fuel mixtures were defined for each pellet subring, where different burnup rates were allowed in every subregion. The ^{239}Pu radial profile inventory was then produced at every depletion step. Fig. 4.10 depicts the plutonium inventory as a function of fuel radius at MOC and EOC. Because of spatial self-shielding, ^{238}U capture reactions are more probable near the pellet periphery. Consequently, the ^{239}Pu concentration and BR ratios are greater in the outer regions. Comparing ^{239}Pu

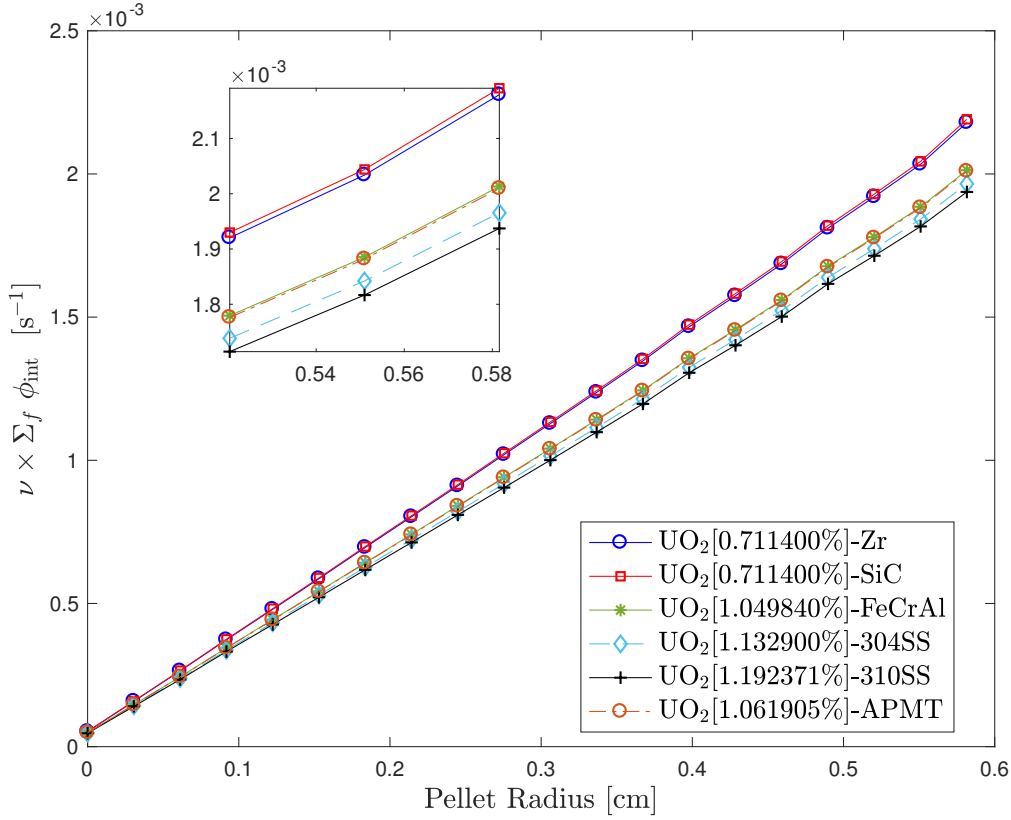


Figure 4.9 Thermal fission neutron production rate radial profile at MOC.

yield for different clad compositions, a certain gap was found between Class I (Zr, SiC) and Class II materials (FeCrAl, APMT, 304SS, 310SS).

At MOC, this gap is of the order of 7% in the pellet center, whereas it is reduced to 0.7% in the same region at EOC. Moreover, it varies from 7% up to 6.2% on the pellet periphery at MOC, while at EOC it decreases nearly exponentially as one moves towards the pin center. The difference can be explained by the spectrum hardening and enrichment effects. The ^{239}Pu inventory, for each time step and subregion, decreases as the cladding neutron capture cross section increases. Also, a higher ^{235}U nucleus presence at each time step implies higher fissile absorption probability than fertile capture chance. At the 280th day, ^{239}Pu concentration in the outer region becomes slightly higher for the cells clad with FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS. Throughout the fuel residence time, total plutonium concentration is lower in optimized cells. At EOC, over 60% more ^{235}U will be left in the optimized cell and a nearly identical plutonium concentration will be left in all cells (see Fig. 4.6). We conclude that a much higher fuel economy is observed in fuel pins clad with SiC and Zr.

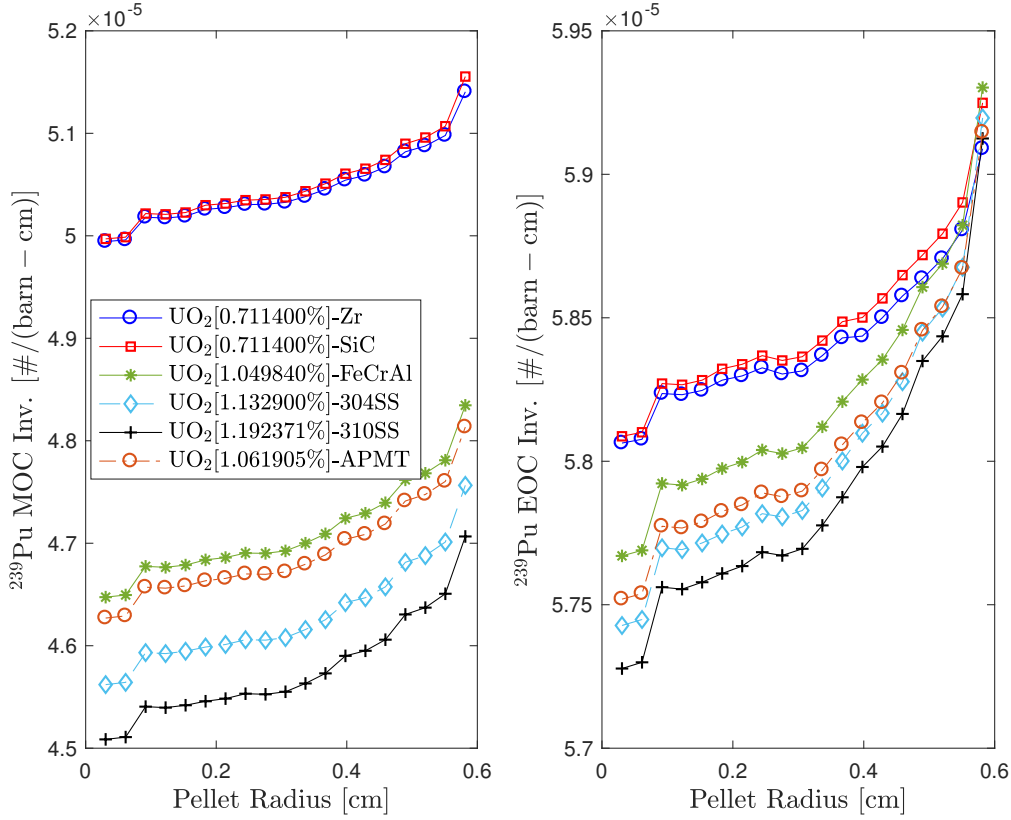


Figure 4.10 ^{239}Pu radial profile at MOC (*left*) and EOC (*right*).

4.4.4 Geometry optimization

Natural uranium fueled cells clad with Class II materials remain subcritical during all depletion cycle, so a fuel enrichment was required to sustain the chain reaction at $\bar{k}_{\text{eff,Zr}}$. After enrichment, some disadvantages persist like the spectral hardening, the lower fission rate and the lower conversion factor. Sheath thickness was reduced by 200 μm to compensate the cladding effect and mitigate the neutronic penalty. Fig. 4.11 presents k_{eff} as a function of the fuel residence time for the first geometry optimization case (\mathcal{C}_1 and \mathcal{C}_4). Depletion results for the second (\mathcal{C}_2 and \mathcal{C}_5) and the third (\mathcal{C}_3 and \mathcal{C}_6) pin arrangements differ only by ~ 100 pcm compared with Fig. 4.11. Such differences cannot be visually ascertained and the figures have not been presented. For the reference case (\mathcal{C}_0 : e_{enrU} , $\epsilon = 418$ μm), Table 4.7 summarizes the criticality level at BOC and the time-averaged k_{eff} . For all configurations proposed (Case \mathcal{C}_1 to \mathcal{C}_6), Table 4.8 lists the cycle reactivity differences with respect to the reference case (\mathcal{C}_0). Decreasing the cladding thickness by reducing the cladding outer radius (\mathcal{C}_1) results in a 66 mk gain in \bar{k}_{eff} in the case of 310SS compared to only 1 mk for SiC. Using the same fuel rod configurations with e_{natU} (\mathcal{C}_4) allowed Class II cells to start the depletion

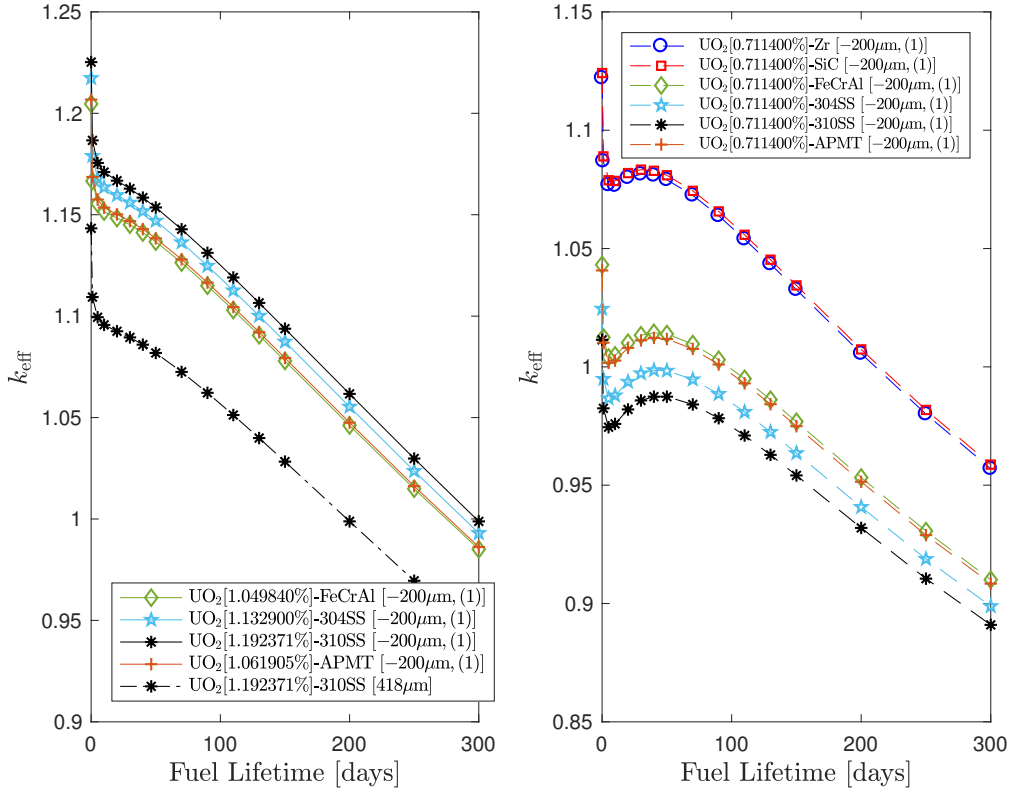


Figure 4.11 Test (1). Variation of k_{eff} with time for cells with optimized enrichment [Cases \mathcal{C}_0 and \mathcal{C}_1 from Table 4.4] (left) and with natural enrichment [\mathcal{C}_4 from Table 4.4] (right).

cycle supercritical (see Fig. 4.11, right). This conclusion remains valid for tests (\mathcal{C}_5) and (\mathcal{C}_6). Such a configuration requires less enrichment to reach $\bar{k}_{\text{eff,Zr}}$ and the spectrum effect should be less pronounced. Reducing the cladding thickness by increasing the pellet outer radius (\mathcal{C}_2) induces a more positive $\Delta\bar{k}_{\text{eff}}$ response. This phenomenon can be explained by a higher fissile material volume. The gain is higher for cells clad with Class II materials because there is more ^{235}U at BOC and during the entire cycle. Diminishing the cladding thickness by introducing a void gap (\mathcal{C}_3) gives the lowest \bar{k}_{eff} improvements for all cells (larger clad volume than for \mathcal{C}_1 without the additional fuel of \mathcal{C}_2 to compensate for clad absorption). The opposite effect is observed when the vacuum gap and the cladding positions are interchanged (as in the hypothetical example \mathcal{C}_3^h) because of the additional reduction in the coolant volume with respect to \mathcal{C}_1 .

We conclude that decreasing the cladding thickness leads to a more enhanced reactivity in iron and steel-based cells. Optimizing the cladding thickness by increasing the fuel volume (\mathcal{C}_2) induces the best improvements of \bar{k}_{eff} , followed by coolant volume increase (\mathcal{C}_1) and finally the void gap increase (\mathcal{C}_3). In other words, balance between neutronic capture and enrichment

penalties could be more adapted by choosing one of Case 1-3 new configurations. From a safety standpoint, reducing the cladding thickness by more than 200 μm is not desirable and the capability of fission products retention, for such a thin clad, should be investigated.

Table 4.7 k_{eff} at BOC and time-averaged k_{eff} for Case (\mathcal{C}_0) fuel pin configuration (optimized enrichment and reference geometry configuration).

	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
$k_{\text{eff}}(t_0, \mathcal{C}_0)$	1.118047	1.122149	1.141111	1.142709	1.143292	1.141600
$\bar{k}_{\text{eff}}(\mathcal{C}_0)$	1.026239	1.029790	1.026239	1.026239	1.026239	1.026239

Table 4.8 k_{eff} difference (initial and cycle average) with respect to the reference case (\mathcal{C}_0) for alternate fuel pin configurations (\mathcal{C}_1 to \mathcal{C}_6).

	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
$\Delta k_{\text{eff}}(t_0, \mathcal{C}_1)[\text{mk}]$	+3.99	+2.02	+63.54	+74.65	+81.95	+65.17
$\Delta \bar{k}_{\text{eff}}(\mathcal{C}_1)[\text{mk}]$	+3.18	+1.47	+49.94	+59.53	+65.95	+51.42
$\Delta k_{\text{eff}}(t_0, \mathcal{C}_4)[\text{mk}]$	+3.99	+2.02	-97.98	-118.18	-131.87	-100.87
$\Delta \bar{k}_{\text{eff}}(\mathcal{C}_4)[\text{mk}]$	+3.18	+1.47	-53.90	-67.50	-77.09	-55.81
$\Delta k_{\text{eff}}(t_0, \mathcal{C}_2)[\text{mk}]$	+3.50	+1.47	+64.45	+75.86	+83.37	+66.09
$\Delta \bar{k}_{\text{eff}}(\mathcal{C}_2)[\text{mk}]$	+4.38	+2.63	+51.92	+61.65	+68.18	+53.39
$\Delta k_{\text{eff}}(t_0, \mathcal{C}_5)[\text{mk}]$	+3.50	+1.47	-95.90	-115.54	-128.86	-98.74
$\Delta \bar{k}_{\text{eff}}(\mathcal{C}_5)[\text{mk}]$	+4.38	+2.63	-50.60	-63.74	-73.01	-52.47
$\Delta k_{\text{eff}}(t_0, \mathcal{C}_3)[\text{mk}]$	+5.68	+3.77	+62.99	+73.67	+80.70	+64.56
$\Delta \bar{k}_{\text{eff}}(\mathcal{C}_3)[\text{mk}]$	+4.28	+2.62	+49.41	+58.67	+64.87	+50.84
$\Delta k_{\text{eff}}(t_0, \mathcal{C}_6)[\text{mk}]$	+5.68	+3.77	-98.78	-119.47	-133.50	-101.74
$\Delta \bar{k}_{\text{eff}}(\mathcal{C}_6)[\text{mk}]$	+4.28	+2.62	-54.71	-68.69	-78.54	-56.67
$\Delta k_{\text{eff}}(t_0, \mathcal{C}_3^h)[\text{mk}]$	+6.39	+4.23	+71.59	+83.82	+91.87	+73.39
$\Delta \bar{k}_{\text{eff}}(\mathcal{C}_3^h)[\text{mk}]$	+4.81	+2.94	+56.17	+66.76	+73.87	+57.80
$\Delta k_{\text{eff}}(t_0, \mathcal{C}_6^h)[\text{mk}]$	+6.39	+4.23	-89.58	-108.50	-121.33	-92.30
$\Delta \bar{k}_{\text{eff}}(\mathcal{C}_6^h)[\text{mk}]$	+4.81	+2.94	-47.99	-60.65	-69.61	-49.75

4.4.5 Reactivity perturbations

During normal operations, the CANDU-6 reactor is continuously refueled by an appropriate rate of fuel replacement (Rouben, 1984). Cells based on FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS cladding need enriched uranium fuel, which has a much larger excess reactivity than current CANDU fuel. A small reactivity perturbation in a critical state can make the reactor power diverge (Lewins, 1978; Rozon, 1998). It is not known yet how the cells would react for these

candidate claddings to temperature and density perturbations. Here, we compare the six cell responses when the following perturbation scenarii on local parameters are examined:

- (a) the coolant temperature T_c is adjusted separately by $\pm 10\text{K}$, $\pm 20\text{K}$ and $\pm 30\text{K}$.
- (b) the moderator temperature T_m is adjusted separately by $\pm 10\text{K}$, $\pm 20\text{K}$ and $\pm 30\text{K}$.
- (c) the fuel temperature T_f is adjusted separately by $\pm 100\text{K}$, $\pm 200\text{K}$ and $\pm 300\text{K}$.
- (d) the coolant density ρ_v^c is reduced by -1% , -5% , -10% , -50% , -70% and -100% .
- (e) the moderator density ρ_v^m is reduced by -1% , -5% , -10% and -50% .
- (f) both the coolant density and temperature (T_c , ρ_v^c) are simultaneously perturbed.
- (g) both the coolant density and the fuel temperature (T_f , ρ_v^c) are simultaneously perturbed.

The system criticality is computed by measuring its deviation from the Rayleigh reference ratio $\lambda = M\phi/F\phi$, where M represents the total neutron removal operator (losses by leakage and interactions) and F the total fission neutron production operator (prompt and delayed fissions). At each depletion step, the departure from $\lambda_{\text{ref}} = 1/k_{\text{eff,ref}}$ (optimized case \mathcal{C}_0 presented in Fig. 4.4) measures the cell criticality variation and defines its dynamic reactivity $\rho(t)$ (Rozon, 1998). When perturbations occur, we evaluate the perturbed effective multiplication factor $k_{\text{eff,per}}$ and compute:

$$\rho(t) = \left(\frac{1}{k_{\text{eff,ref}}(t)} - \frac{1}{k_{\text{eff,per}}(t)} \right) \times 1000 \text{ [mk]}. \quad (4.2)$$

Tables 4.9 and 4.10 present the cell reactivity responses at BOC while Tables 4.11 and 4.12 list the same responses at MOC. Fig. 4.12 depicts the dynamic reactivity evolution for selected perturbations. All data presented was derived by evolving the bundle under reference conditions and applying the perturbations separately at each burnup step.

4.4.5.1 Coolant temperature perturbations

For both Class I and II materials, increasing the coolant temperature, at BOC, produces negative variations in the system criticality (Table 4.9, *part I*). In the coolant, fission neutrons are in thermal equilibrium with heavy water isotopes. Assuming a Maxwell-Boltzmann distribution, the most probable neutron energy is $(3k_B T_c/2)$, where k_B is the Boltzmann constant. The neutron mean velocity is then $v = \sqrt{3k_B T_c/m}$. Consequently, if the coolant temperature increases, the neutrons are faster. The average energy of the slowed down neutrons slightly increases which results in a lower rate of fission in ^{235}U , the only fissile isotope in CANDU fresh bundles. Increasing the coolant temperature at MOC (Table 4.11, *part I*)

results in an opposite effect to that observed at BOC, because of the contribution of ^{239}Pu resonance (0.3eV). Reactivity increases with burnup (Fig. 4.12) because more and more ^{239}Pu is accumulated as the fuel depletes. The higher reactivity values were found in Zr and SiC bundles, followed by both FeCrAl and APMT, 304SS and finally 310SS. This order complies with plutonium evolution inventory in Fig. 4.6, plutonium radial profile in Fig. 4.10 and the increasing capture cross section of the claddings in the thermal-epithermal region (Fig. 4.2).

4.4.5.2 Moderator temperature perturbations

Table 4.9, *part II*, shows that increasing the moderator temperature has exactly the same global effect as for the coolant. The phenomenon is the same as that previously explained (thermal equilibrium and faster neutron returns). The difference is that, at MOC, reactivity values are ~ 4 times more pronounced than for T_c perturbations. This is because the moderator volume is 83% of the CANDU reactor core, which can be compared with 4% for the coolant (Griffiths, 1983; Whitlock, 1995).

4.4.5.3 Fuel temperature perturbations

Table 4.9, *part III*, shows that all bundles' reactivity decreases as the fuel temperature increases. This behavior is mainly due to the Doppler effect: as ΔT_f is increased, resonance broadening increases the neutron radiative capture for ^{238}U . At MOC (Table 4.11, *part III*), assuming a positive perturbation $\Delta T_f = +100, +200$ and $+300\text{K}$, a positive reactivity is observed for SiC and Zr bundles. This effect is caused by ^{239}Pu contributions. Reactivity values are two times higher at BOC because all bundles were freshly fueled. Fig. 4.12 shows that the Doppler effect remains higher for Zr and SiC bundles, until the 5th day, because less ^{238}U captures occur in enriched cells. Table 4.9, *part III*, and Table 4.5 show that, at BOC, the higher Doppler coefficient correspond to the rank of the lower enrichment needed. After that period, the behaviors are completely inverted because a higher ^{239}Pu fission rate is observed in the natural cells.

4.4.5.4 Coolant density perturbations

Coolant partial voiding can be caused by a fuel overpower, excessive heat flux and then a coolant boiling. Coolant complete evaporation can be caused by a loss of power to the circulating pumps. In pressure-tube thermal reactors (CANDU and RBMK), such effects are confined to the coolant and the moderator is not directly affected (Rozon, 1998). As one can see, a complete loss in cooling capacity makes the system prompt supercritical. Table 4.10

and Table 4.12, *parts I*, show that for all cells, the reactivity increases as the coolant voiding percentage increases.

In CANDU reactors, the coolant occupies 4% of the cell volume. Its moderation role can be neglected in comparison with the moderator contribution. Fuel rods are the main sources of fast neutrons (0.821 MeV up to 10 MeV) while the moderator is the major source of the thermal neutrons (≤ 0.625 eV). One role of the coolant is to slow down fast neutron to epithermal energies. Removing the coolant role increase reactivity by decreasing resonance absorption in the pin rods (resonance escape probability p increases). In addition, the coolant only contributes 0.03% of all the absorptions in the cell (Whitlock, 1995). Thus, decreasing the coolant density will not affect the overall absorption. Fast fission rates also increase since less scattering takes place and the fast neutrons can reach a neighboring fuel pin. Whitlock *et al.* (1995) showed that at zero burnup “31% of the total effect is due to the thermal factors ($\eta + f$), 7% is due to the fast factors (p_f and ϵ) and 62% is due to the epithermal factor (p_e)”. When the ^{239}Pu concentration in the fuel increases, a change occurs in the reproduction factor (η) and a reduction in (f) component (neutron spectrum is shifted away from ^{239}Pu and ^{241}Pu significant thermal fission resonance), which imply a net negative effect. Thus, this contribution to the void effect is zero at BOC (fresh fuel) and slightly negative at MOC (equilibrium fuel). Consequently, bundles containing higher ^{239}Pu concentration (Zr and SiC) see a larger decrease of their coolant void reactivity with burnup (Table 4.12, *part I*).

4.4.5.5 Moderator density perturbations

Table 4.10 and Table 4.12, *parts II*, show that the cells reactivity decreases as the moderator voiding rate increases. This result is opposite to the behavior observed for the coolant. The flux reaching the moderator is an epithermal flux. When the moderator density decreases, the thermalization process is less efficient. Neutrons that return are more energetic than in normal operation conditions. Neutrons pass far from ^{235}U and ^{239}Pu resonances, which explains the negative voiding coefficient. Moderator voiding effect is slightly more negative in Zr and SiC bundles.

4.4.5.6 Simultaneous perturbations in coolant temperature and density

The reactivity of all cells increase as we both decrease the coolant density and increase the coolant temperature. D_2O density was computed according to the assumed ΔT_c perturbation and the coolant purity, using WIMS-AECL temperature tabulations (Marleau *et al.*, 2018). The simultaneous effect (+30 K, -9%), at MOC, for FeCrAl (for example) produced a reactivity of +1.6 mk, which is, approximately, the sum of +1.3 mk (perturbation $\Delta\rho_v^c = -10\%$,

Table 4.12-*part I*) and +0.4 mk (perturbation $\Delta T_c = +30\text{K}$, Table 4.11-*part I*). The overall effect is the sum of the individual effects, coolant density reduction being the slightly dominant effect. The overall effect is more pronounced in Class I cells.

4.4.5.7 Simultaneous perturbations in coolant density and fuel temperature

Combining a complete loss of the coolant with an increase of +300 K in the fuel temperature increases the reactivity of all cells by a minimum of +10.73 mk (Table 4.10 and Table 4.12, *parts IV*) . This perturbation is close to RIA conditions and allows another consideration of joint effects. Reactivity values are higher at MOC because more ^{239}Pu and ^{241}Pu fissions occur as fresh bundles deplete. As seen in Section 4.4.5.6, the overall effect is the sum of the individual effects. Table 4.10, *part IV*, shows that SiC reactivity increases by +12.17 mk, at BOC, which is approximately the sum of +15.39 mk (perturbation $\Delta\rho_v^c = -100\%$, Table 4.10-*part I*) and -3.38 mk (perturbation $\Delta T_f = +300\text{K}$, Table 4.9-*part III*). For both BOC and MOC, reactivity increases are lower in ferritic and steel-cladded bundles.

4.5 Conclusion

The neutron economy performance for each cladding material is quantified in comparison with the baseline zirconium alloy used in actual CANDU-6 reactors. UO_2 fuel bundle calculations are performed for iron-based alloys (FeCrAl and APMT), steel-based alloys (304SS and 310SS), silicon carbide (SiC) and Zircaloy (Zr-II) cladding. Ni-59 and Fe-56 high thermal captures involve a major neutron penalty for steel and iron-based claddings. The first serious consequence, for these alloys, is that a chain reaction can not be sustained in CANDU-6 actual conditions (fuel pin geometry and natural enrichment). The more neutron transparent SiC cladding results in the best neutron economy throughout the life cycle. A positive $0.35\% \Delta\bar{k}_{\text{eff}}$ from Zircaloy-II is produced in $[\text{UO}_2, \text{SiC}]$ cell in the same CANDU-6 conditions. For iron and steel alloys, an enrichment methodology is developed to reach the CANDU-6 cell cycle averaged multiplication factor.

Increasing the enrichment causes the ^{239}Pu peak, observed in k_{eff} patterns, to disappear and induces a higher k_{eff} decreasing rate with burnup. The slow neutron absorption rate is found to be 203 times more pronounced in UO_2 pellet than in SiC cladding, while this ratio is reduced to 8 and 6, respectively, in iron and steel-based claddings. Spectral analysis is performed at every burnup steps for fuel, cladding and moderator. A spectral hardening is found in cells made with FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS, that induces a lower accumulation of actinides and fission products. Neutron flux spectrum (ϕ_m^g) is found 30.5% higher at 0.0253eV

in SiC and Zr cells, leading to lower ^{239}Pu production in enriched cells. A minimum of 50% more xenon poison is produced at end-of-life in iron and steel-based bundles. All cells showed radially a similar fission rate and plutonium inventory profiles. At MOC, on the pellet periphery, the fission rate and the plutonium concentration are found, respectively, 7.6% and 6.2% smaller in steel and iron-based alloys. At EOC, a minimum of 60% more fissile ^{235}U is left in the enriched cell. Three fuel pin configurations are examined in both natural (e_{natU}) and optimized (e_{enrU}) enrichment conditions to compensate the cladding effect. Reducing the sheath thickness by 200 μm allowed iron and steel-based cells to start the depletion cycle supercritical in e_{natU} condition. Decreasing the cladding thickness always has a larger impact for iron and steel-based cells. By perturbing coolant and moderator densities and temperatures, and fuel temperature, different moderate and severe DB scenarios are simulated at BOC and MOC. Burnup calculations are performed under nominal conditions. At zero burnup, fuel temperature coefficients (Doppler effect) are higher in SiC and Zr bundles. After plutonium accumulation (MOC), this behavior is inverted. At mid-burnup, the coolant voiding effect is slightly higher in bundles made with iron and steel-based alloys while at BOC it was lower.

Based on these results, future work will consider the second level of our computational scheme, namely full-core calculations. We will then determine neutron poison requirements and analyze the reactor global behavior during normal and accidental operations scenarios. LOCA and RIA accidents will be simulated and the new margins earned from Zircaloy-II case will be quantified.

4.6 Acknowledgments

The authors acknowledge the Natural Sciences and Engineering Research of Canada (NSERC) for partly funding this work. The authors thank Yasamin Majedi for her valuable help in grammar and speller checking.

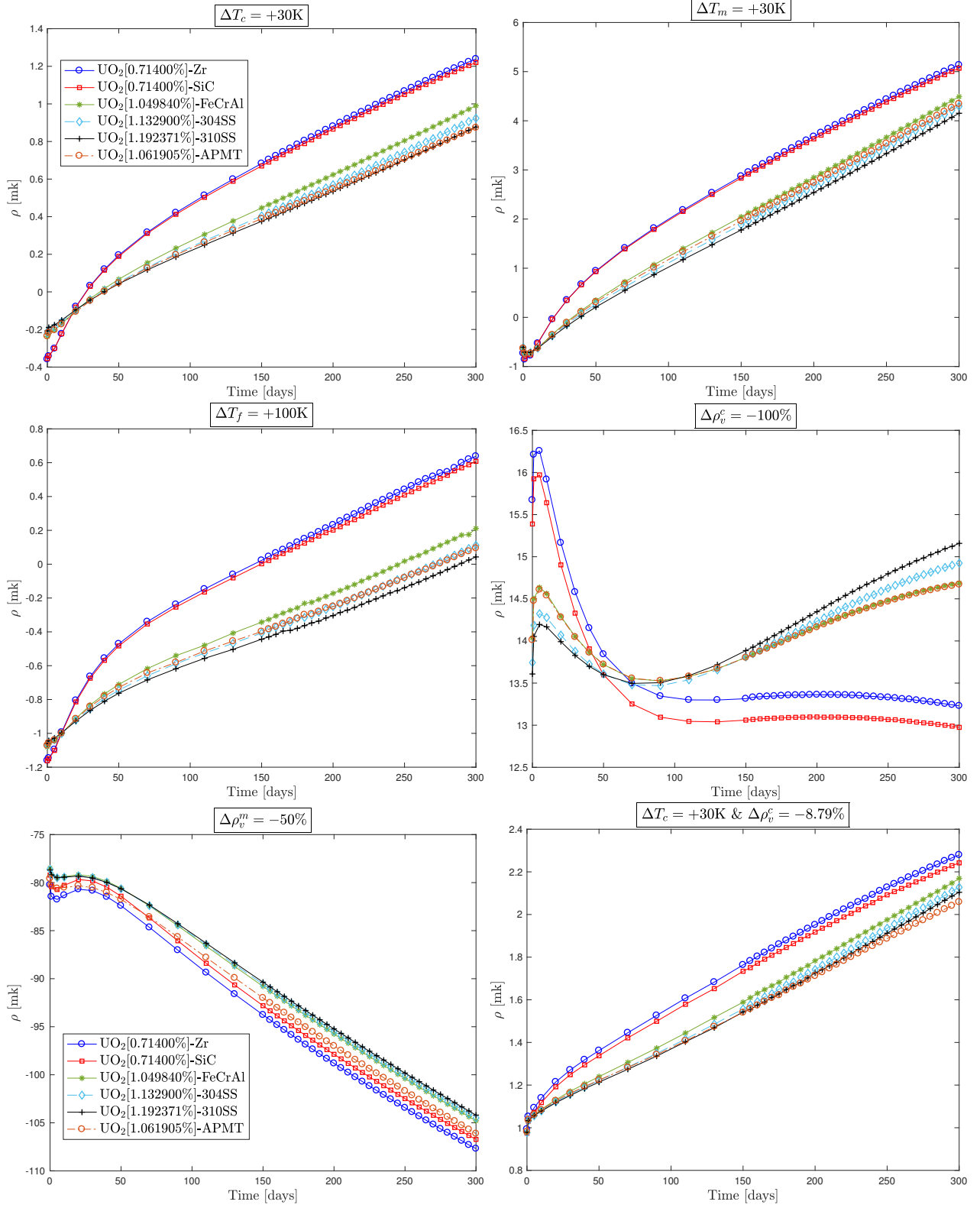


Figure 4.12 Various perturbations scenarios illustrated.

Table 4.9 Reactivity ρ [mk] at BOC following perturbations in coolant (ΔT_c), moderator (ΔT_m) and fuel (ΔT_f) temperature.

ΔT_c	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
-30 K	+0.36	+0.36	+0.24	+0.22	+0.21	+0.24
-20 K	+0.24	+0.24	+0.16	+0.15	+0.14	+0.16
-10 K	+0.12	+0.12	+0.08	+0.07	+0.07	+0.08
+10 K	-0.12	-0.12	-0.08	-0.07	-0.07	-0.08
+20 K	-0.24	-0.24	-0.16	-0.15	-0.14	-0.16
+30 K	-0.36	-0.36	-0.24	-0.22	-0.21	-0.24
ΔT_m	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
-30 K	+0.72	+0.71	+0.62	+0.60	+0.59	+0.62
-20 K	+0.49	+0.48	+0.42	+0.41	+0.40	+0.42
-10 K	+0.25	+0.24	+0.21	+0.21	+0.20	+0.21
+10 K	-0.25	-0.24	-0.21	-0.21	-0.20	-0.21
+20 K	-0.49	-0.48	-0.42	-0.41	-0.40	-0.42
+30 K	-0.73	-0.72	-0.64	-0.62	-0.61	-0.63
ΔT_f	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
-300 K	+3.90	+3.91	+3.62	+3.58	+3.55	+3.60
-200 K	+2.53	+2.54	+2.35	+2.32	+2.31	+2.33
-100 K	+1.23	+1.23	+1.14	+1.13	+1.12	+1.13
+100 K	-1.16	-1.16	-1.08	-1.07	-1.06	-1.07
+200 K	-2.28	-2.29	-2.12	-2.09	-2.08	-2.10
+300 K	-3.37	-3.38	-3.12	-3.09	-3.06	-3.10

Table 4.10 Reactivity ρ [mk] at BOC following volumetric mass density perturbations $\Delta\rho_v^c$ in coolant, $\Delta\rho_v^m$ in moderator, simultaneous perturbations $(\Delta T_c, \Delta\rho_v^c)$ in coolant and $(\Delta T_f, \Delta\rho_v^c)$ in both fuel and coolant.

$\Delta\rho_v^c$	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
-2.5%	+0.37	+0.37	+0.34	+0.34	+0.33	+0.34
-5%	+0.75	+0.74	+0.68	+0.67	+0.67	+0.68
-10%	+1.51	+1.48	+1.36	+1.34	+1.33	+1.36
-50%	+7.64	+7.51	+6.88	+6.76	+6.70	+6.87
-70%	+10.79	+10.60	+9.70	+9.51	+9.43	+9.68
-100%	+15.67	+15.39	+14.04	+13.74	+13.61	+14.01
$\Delta\rho_v^m$	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
-1%	-1.65	-1.63	-1.64	-1.65	-1.65	-1.67
-5%	-3.44	-3.40	-3.42	-3.43	-3.44	-3.47
-10%	-7.48	-7.39	-7.42	-7.45	-7.47	-7.53
-50%	-80.23	-79.22	-78.49	-78.63	-78.68	-79.59
$(\Delta T_c, \Delta\rho_v^c)$	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
(+30K, -8.79%)	+0.99	+0.97	+0.98	+0.98	+0.98	+0.98
(+20K, -5.55%)	+0.61	+0.60	+0.61	+0.60	+0.61	+0.61
(+10K, -2.68%)	+0.29	+0.28	+0.29	+0.29	+0.29	+0.29
(-10K, +2.57%)	-0.26	-0.26	-0.27	-0.27	-0.27	-0.27
(-20K, +4.93%)	-0.49	-0.48	-0.50	-0.51	-0.51	-0.51
(-30K, +7.16%)	-0.69	-0.67	-0.72	-0.72	-0.73	-0.72
$(\Delta T_f, \Delta\rho_v^c)$	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
(+300K, -100%)	+12.46	+12.17	+11.10	+10.84	+10.73	+11.09

Table 4.11 Reactivity ρ [mk] at MOC following perturbations in coolant (ΔT_c), moderator (ΔT_m) and fuel (ΔT_f) temperature.

ΔT_c	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
-30 K	-0.64	-0.63	-0.42	-0.37	-0.35	-0.46
-20 K	-0.43	-0.42	-0.28	-0.25	-0.23	-0.32
-10 K	-0.21	-0.21	-0.14	-0.13	-0.12	-0.18
+10 K	+0.22	+0.21	+0.14	+0.13	+0.12	+0.09
+20 K	+0.45	+0.44	+0.29	+0.26	+0.24	+0.24
+30 K	+0.68	+0.67	+0.45	+0.40	+0.38	+0.39
ΔT_m	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
-30 K	-2.67	-2.64	-1.85	-1.70	-1.60	-1.87
-20 K	-1.84	-1.82	-1.29	-1.18	-1.11	-1.31
-10 K	-0.93	-0.91	-0.65	-0.60	-0.56	-0.69
+10 K	+0.94	+0.92	+0.66	+0.61	+0.57	+0.60
+20 K	+1.89	+1.86	+1.34	+1.23	+1.16	+1.27
+30 K	+2.87	+2.83	+2.04	+1.89	+1.78	+1.96
ΔT_f	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
-300 K	+0.60	+0.66	+1.64	+1.81	+1.93	+1.60
-200 K	+0.30	+0.34	+0.99	+1.12	+1.20	+0.96
-100 K	+0.09	+0.11	+0.44	+0.51	+0.55	+0.40
+100 K	+0.02	+0.00	-0.34	-0.41	-0.44	-0.40
+200 K	+0.09	+0.05	-0.63	-0.81	-0.84	-0.69
+300 K	+0.23	+0.16	-0.85	-1.07	-1.19	-0.90

Table 4.12 Reactivity ρ [mk] at MOC following volumetric mass density perturbations $\Delta\rho_v^c$ in coolant, $\Delta\rho_v^m$ in moderator, simultaneous perturbations $(\Delta T_c, \Delta\rho_v^c)$ in coolant and $(\Delta T_f, \Delta\rho_v^c)$ in both fuel and coolant.

$\Delta\rho_v^c$	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
-2.5%	+0.32	+0.32	+0.34	+0.34	+0.34	+0.29
-5%	+0.64	+0.64	+0.67	+0.67	+0.68	+0.63
-10%	+1.29	+1.27	+1.34	+1.35	+1.36	+1.30
-50%	+6.50	+6.39	+6.76	+6.78	+6.82	+6.74
-70%	+9.17	+9.00	+9.52	+9.55	+9.60	+9.51
-100%	+13.31	+13.06	+13.80	+13.81	+13.89	+13.80
$\Delta\rho_v^m$	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
-1%	-1.95	-1.94	-1.91	-1.90	-1.90	-1.98
-5%	-4.07	-4.04	-3.97	-3.96	-3.96	-4.07
-10%	-8.83	-8.76	-8.61	-8.60	-8.59	-8.77
-50%	-93.77	-92.81	-90.80	-90.57	-90.37	-92.00
$(\Delta T_c, \Delta\rho_v^c)$	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
(+30K, -8.79%)	+1.76	+1.73	+1.59	+1.56	+1.54	+1.54
(+20K, -5.55%)	+1.14	+1.12	-0.95	+1.00	+0.99	-1.00
(+10K, -2.68%)	+0.56	+0.55	-0.49	+0.49	+0.48	-0.54
(-10K, +2.57%)	-0.55	-0.54	+0.50	-0.47	-0.47	+0.45
(-20K, +4.93%)	-1.08	-1.06	+1.02	-0.93	-0.91	+0.97
(-30K, +7.16%)	-1.61	-1.58	+1.59	-1.37	-1.34	+1.54
$(\Delta T_f, \Delta\rho_v^c)$	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
(+300K, -100%)	+13.89	+13.56	+13.23	+13.04	+12.95	+13.22

CHAPITRE 5 ARTICLE 2: CANDU-6 OPERATION SIMULATIONS USING ACCIDENT TOLERANT CLADDING CANDIDATES

- Authors: Ahmed Naceur and Guy Marleau.
- Submitted to the Journal “*Annals of Nuclear Energy*” in May 8th 2018.

5.1 Abstract

The 3D DRAGON-DONJON capabilities are exploited to simulate CANDU-6 (Canada Deuterium Uranium) core follow-up with alternate cladding materials. Ferritic based alloys (FeCrAl and APMT), steel-based alloys (304SS and 310SS) and silicon carbide (SiC) are compared with Zircaloy-II. Increased ^{235}U enrichment in iron and steel-based core results in the absence of the ^{239}Pu peak in k_{eff} burnup curve, a low breeding ratio and a fast core reactivity decline. A minimum of 3.4 mk increase in core reactivity and only 0.1 ppm boron poisoning increase are introduced when SiC is considered, while keeping natural uranium fuel. Because of the relatively large enrichment requirements, the boron concentration is from 11 to 13 times higher in iron and steel systems. All systems are found in compliance with the CANDU’s operating license limits. Due to ^{56}Fe and ^{59}Ni high thermal captures in iron and steel claddings, a spectral hardening is observed in the inner and the outer core regions throughout the burnup cycle. For iron and steel-based cores respectively, the thermal flux is lower than that obtained for the CANDU-6 reference system by at least 16.1% and 18.3%. The spectral hardening results in a 246 kW lower channel power. SiC flux and channel power differences are below 0.3% and 1.5 kW. Using an 8 bundle shift on-power refueling scheme based on the CANDU channel age model, SiC, FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS refueling operations start from 8 to 12 days after the standard CANDU-6 refueling date. Silicon allows a complete cycle operation with an economy of at least 256 fresh bundles. Iron and steel-based systems’ responses to loss of regulation control events are respectively 2.8 mk and 3.5 mk lower than for the reference Zircaloy system. Due to lower relative concentrations of $^{239,241}\text{Pu}$, coolant and moderator temperature reactivity coefficients are found lower in enriched cores. At mid-burnup and high temperatures, the Doppler effect is positive in Zircaloy and SiC systems, while negative in steel and iron ones. The CANDU coolant void reactivity is reduced by 1.9 mk and 2.3 mk respectively when iron and steel cladding are used.

5.2 Introduction

In a typical CANDU-6 reactor, pin cladding is the first safety barrier for radionuclides retention, followed by the pressure tube, the calandria tube, the calandria vessel and finally the reactor containment building. The first 3 barriers use zirconium-based alloys. Zr-based fuel cladding originates from Admiral Hayman Rickover visit to the Clinton Engineer Works (Oak Ridge, TN) in June 1946 ([Terrani, 2018](#)), when he decided to use zirconium as fuel cladding in the PWR-S1W, the land-based prototype reactor for the U.S. Navy's Nautilus submarine ([Rickover, 1975](#)). The Rickover decision was then endorsed when [Kaufmann \(1948\)](#) at MIT and [Pomerance \(1948\)](#) at Oak Ridge succeeded in separating the highly absorbing hafnium impurity from a zirconium specimen. In Canada, unique technical challenges ([Lewis, 1956](#)) for the ZEEP (Zero Energy Experimental Pile) and NRX (National Research Experimental) facilities highlighted that significant changes had to be made to the structure materials to operate in high pressures and temperatures environment ([Chaplin, 2014](#)). Changing fuel cladding from aluminium to nickel and hafnium-free Zircaloy-II ([Page, 1976](#)), on the one hand, and adopting a zirconium-niobium alloy pressure tube rather than an aluminium pressure vessel design ([Rae, 1997](#)), on the other hand, are 2 of the 3 major changes introduced by AECL (Atomic Energy of Canada Limited) during the 22 MW NPD (Nuclear Power Demonstration) reactor design work in August 1955 ([Hurst, 1997](#); [Chaplin, 2014](#)). Due to their sufficient neutron transparency ([Pomerance, 1952](#)), excellent aqueous corrosion resistance ([Goldman, 1953](#); [Kass, 1954](#); [Lustman et Kerze, 1955](#); [Motta et al., 2015](#)), high melting point (1852 °C), greatly improved mechanical strength ([Ambartsumyan et al., 1959](#); [IAEA, 1993](#)), excellent weldability and impermeability to trapped fission gases ([Merckx, 1958](#)), zirconium-based alloys are now widely selected as structure materials for water-cooled power reactors.

During the late 1960's and early 1970's, reactor designers and regulators understanding of the nuclear power system integral behavior established the current safety framework for nuclear industry ([Zinkle et al., 2014](#)). Given a deterministic analytical approach, the emergency core cooling system (ECCS) was designed to respond to loss-of-coolant accident (LOCA) and reactivity insertion accident (RIA) ([Cheng, 1980](#)). This design basis (DB) accident stipulated that a peak cladding temperature ($> 1204.45\text{ }^{\circ}\text{C}$) must be avoided (zirconium rapid transient oxidation), a maximum cladding oxidation (> 0.17 times the original cladding thickness) must not be reached (excessive hydrogen accumulation) with a coolable cladding geometry ([U.S. Atomic Energy Commission, 1973](#); [Johnston, 1977](#)). Canadian work on hydrogen in zirconium dates from the Zr-2.5Nb pressure tube adoption during NPD design work ([Sawatzky et Ells, 2000](#)). Hydrogen diffusion in Zircaloy-II was investigated over the temperature range 260 to 560 °C ([Sawatzky, 1960](#)), while the axial hydrogen diffusivity in

Zr-2.5Nb was investigated over the temperature range 200 to 700 °C (Sawatzky *et al.*, 1982). Over the years, active plant safety systems have ensured fuel pin protection while tolerating a 1200 °C maximum cladding temperature for less than 400 s (Karoutas *et al.*, 2018). The Three Mile Island Unit 2 partial meltdown, March, 28th 1979, demonstrated that a beyond design basis (BDB) accident, where a zirconium temperature above 1200 °C was reached for more than 400 s, could occur (Corey, 1979; Rogovin, 1980; Karoutas *et al.*, 2018). Zinkle *et al.* (2014) report that: “*[this accident] induced two important shifts in reactor safety assessment and implementation approaches. The first was to augment the deterministic approach with probabilistic risk assessment (PRA) to better capture the complexities of system behavior. The second shift was to transition away from active safety systems towards passively safe reactor concepts. While the former was adopted more readily, the latter is just now being realized and only in certain parts of the world [...]*”. The Fukushima Daiichi Units 1-3 station blackout (SBO), March, 11th 2011, demonstrated that the active cooling system could be lost for several days (IAEA, 2015). Rapid zirconium oxidation in a high-temperature steam environment, followed by hydrogen accumulation, release and detonation, showed that core physical and chemical degradation and finally core complete meltdown is a credible scenario (Burns *et al.*, 2012; Nuclear Energy Agency, 2012). This BDB incident challenged the modeling assumptions used in the PRA approach to quantify operational risk (Zinkle *et al.*, 2014). Accordingly, significant international efforts (Goldner, 2012; Sowder, 2012; Koo *et al.*, 2014; Brachet *et al.*, 2015) were immediately placed on enhancing the nuclear fuel pin behavior in high-pressure steam environment at temperatures above 1200 °C. The so-called accident tolerant fuel (ATF) concept aims to cover the entire DB and BDB accident spectrum by tolerating cladding cooling loss for a longer time, while improving, or at least maintaining, the core neutronic performance during nominal conditions (Ott *et al.*, 2014). After reviewing a wide range of candidates, Pint *et al.* (2013, 2015) show that alumina, chromia and silica are three conventional classes of protective oxide films that offer more than one hundred times improvement in oxidation resistance in steam-H₂ environments above 1200 °C. Although zirconia (ZrO₂) has exceptional thermodynamic stability in steam, Steinbrück *et al.* (2011) thermo-gravimetric tests with AREVA (Duplex DX-D4,M5®), Westinghouse ZIRLO™ and Russian 110 alloy show a strong correlation between formed zirconia (ZrO₂) morphology and oxygen and hydrogen uptake, leading to an exponential oxidation with temperature increase and finally cladding embrittlement. In the case of chromium protective coating on Zr-based alloys surface, the most important challenge is that 25 to 40 tonnes of zirconium remain in the reactor core and a fraction of the internal region is exposed to severe oxidizing environment (Terrani, 2018). In this paper, we pursue our previous work (Naceur *et al.*, 2018) on ATF-cladded bundle for CANDU-6 by looking at core follow-up, adopting non-zirconium

claddings based on alumina, chromia and silica protective solutions.

[Terrani \(2018\)](#) reports that several United-States and Japan R&D programs are actually considering the powder metallurgical FeCrAl ($\sim 20\text{wt.}\%\text{Cr}-5\%\text{Al}$) alloys as an ATF cladding technology ([Rebak *et al.*, 2017](#); [Sakamoto *et al.*, 2017](#)). High temperature steam FeCrAl oxidation resistance relies on 2 (top and bottom) adherent slow-growing alumina protective scale (Al_2O_3). Seven hours of 1100°C cladding exposition in ($\text{O}_2, \text{N}_2, \text{H}_2\text{O}$) environments showed that the oxide growth kinetics are water and hydrogen independent ([Hellström *et al.*, 2015](#)). This two-layered scale protects the original metal surface up to $1475-1500^\circ\text{C}$ in high-pressure superheated-steam conditions ([Pint, 2017](#)). The Kanthal alloy APMT (Advanced Powder Metallurgy Tube), with 1.6% more Cr and 0.1% less Al, show a similar slow-growing solid-alumina diffusion barrier (with no scale spallation) after 8 hours' exposure at 1350°C ([Pint *et al.*, 2013](#)) and 4 hours' exposure at 1475°C in steam and dry air environments ([Pint *et al.*, 2015](#)). Y and/or Hf additions are then essential for a better scale adhesion. Nuclear-grade SiC composites ([Snead *et al.*, 2017](#)) are highly regarded as the ideal ATF cladding material ([Terrani, 2018](#)). Owing to its protective SiO_2 layer, these ceramics exhibit a minimal mass change, an exceptional oxidation resistance up to at least 1700°C in high pressure steam ([Terrani *et al.*, 2014a](#)). The well-known problems of SiC aqueous hydrothermal corrosion and plausible microfracture propagation under normal operating conditions or after a core shutdown are now being tackled with an adherent coated SiC solution ([Ang *et al.*, 2017](#); [Ishibashi *et al.*, 2017b](#)) that may also serve as a radionuclide barrier. Conventional 304-type stainless steel ([Brassfield *et al.*, 1968](#)) has a lower steam-cladding oxidation rate than Zircaloy under LOCA conditions but a higher degradation at 1200°C ([Ishida *et al.*, 1986](#)). The study of this sheath will be maintained for its historical irradiation performance in the early decades ([George *et al.*, 2015](#)) and its high burnup capabilities ([Uwaba *et al.*, 2011](#)). Increasing both chromium and nickel contents as for the austenitic type 310SS (25Cr-20Ni) forms a thin chromia (Cr_2O_3) protective scale after 48 h exposure at 1200°C in steam conditions ([Pint *et al.*, 2013](#)). This scale is thinner than the alumina one and less adherent due to its high thermal expansion factor ([Wright et Barry Dooley, 2011](#)).

What we propose here is to compare the current CANDU-6 core neutronic performance to ferritic (FeCrAl and APMT), steel (304SS and 310SS) and silicon carbide (SiC) clad cores analyzing burnup calculations, fresh core poisoning requirements, power and flux distributions, on-power core refueling behavior, loss of regulation control events and core global and local parameters perturbations. In Section 5.3, we describe the nuclear database generation based on fuel lattice calculations and supercell simulations for reactivity devices and structures. We also present how the full-core will be modeled and the refueling scheme that will be considered. In Section 5.4, we analyze the core behavior under normal and accidental

conditions. Finally, in Section 5.5 we draw conclusions and highlight future work.

5.3 Methodology

The CANDU-6 reactor is a cylindrical stainless steel vessel that lies horizontally and is filled with low temperature heavy water (D_2O) moderator, and 380 concentric horizontal (Z -axis) calandria and pressure tubes that contain fuel bundles. The moderator is kept essentially at atmospheric pressure, fulfills the reflector's role and is circulated through a purifier and a heat exchanger. The fuel channels are supported by the calandria end shields and are placed on a square lattice pitch of 28.575 cm. Each channel is filled with 12 identical fuel bundles 49.53 cm long. The inlet and outlet end shields are connected, through a piping system, to the D_2O coolant manifolds. The high pressure and temperature coolant flows in opposite directions in two adjacent pressure tubes in a checkerboard pattern (St-Aubin et Marleau, 2015c). Reactivity measurements and control devices penetrate the calandria perpendicularly to the pressure tubes (X and Y -axis) and are located between channel rows and columns (see Fig. 5.1). This design facilitates secure fuel handling for on-line refueling. The on-power refueling system is designed to operate at all reactor power levels in order to compensate the daily reactivity loss (due to fuel depletion). It can also be used to discharge a defective fuel bundle (Atomic Energy of Canada Limited, 2005). For safety analysis and fuel management purposes, the CANDU core modeling is a 3-level approach. The first level consists of computing the bare cell lattice properties to generate 2-group burnup dependent (\mathcal{B}) diffusion coefficients $D^g(\mathcal{B})$ and condensed and homogenized macroscopic cross sections $\Sigma^g(\mathcal{B})$, where g is the neutron energy group. WIMS (Donnelly, 1986) and DRAGON (Marleau et al., 1992), which are parts of the CANDU Industry Standard Tool-set (IST) of Codes for design and analysis (Rouben, 2002), can be used at this level. The second level aims to generate a 2-group condensed and homogenized incremental cross sections $\Delta\Sigma^g$ for all the reactivity devices that may be inserted in the reactor. This requires to model a controlled volume around the reactivity device and to solve the 3D transport equation for all possible device configurations (Roy et al., 1994). DRAGON is most often used for CANDU supercell simulation (Garland, 2014). The final level is the reactor full-core modeling in 3D Cartesian geometry. Using the cross section libraries generated in the first two levels, the 2-group 3D diffusion equation is solved and core-wide flux distributions are then computed. There are several codes that have been validated against CANDU-6 operation data and can be used at this level, including RFSP (Shen et Schwanke, 2012), DONJON (Varin et al., 2004) and SORO (Shanes et al., 2006).

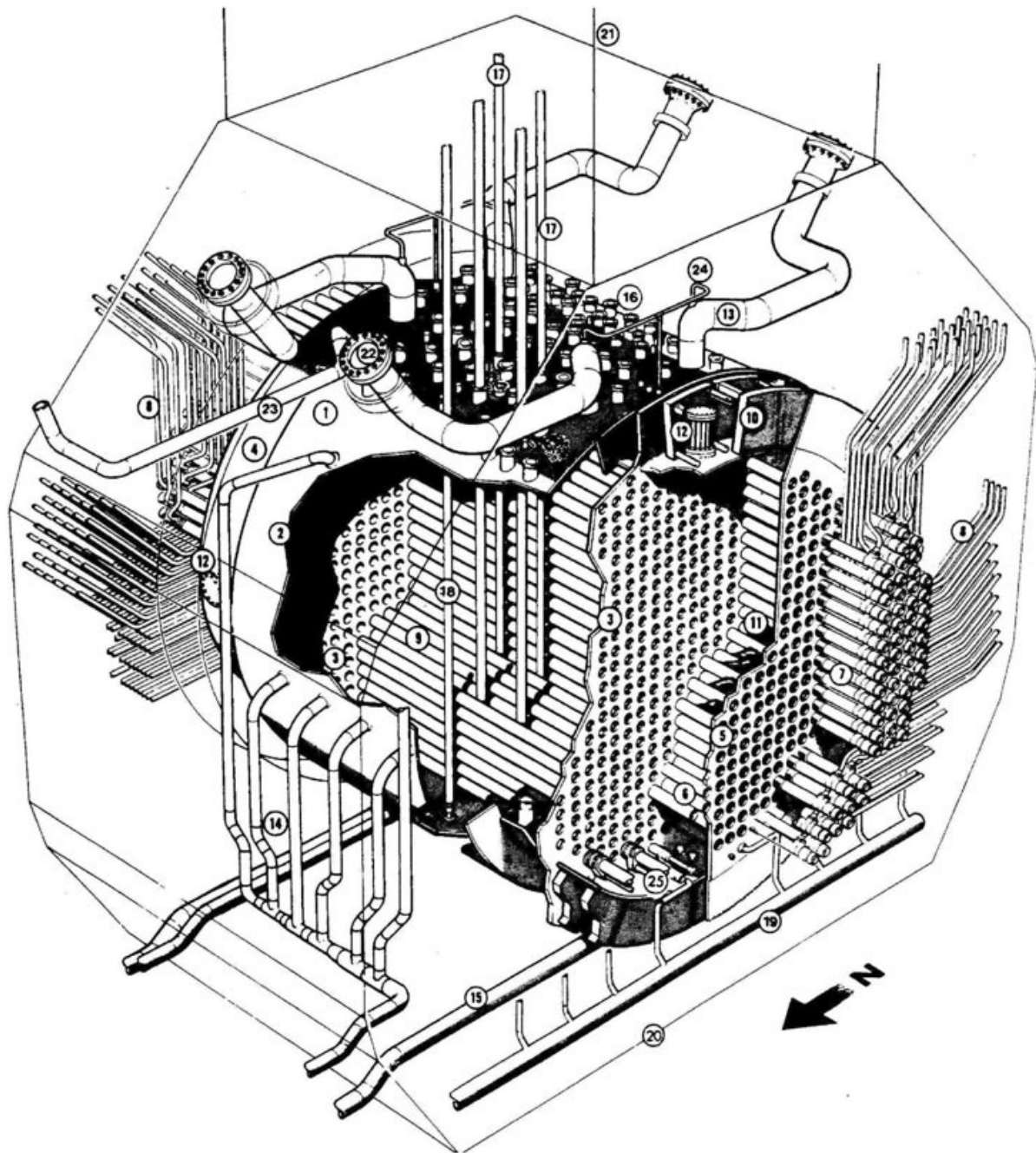


Figure 5.1 CANDU reactor pressure vessel: (1) calandria; (2) calandria main-shell; (3) calandria tubesheet; (4) calandria sub-shell; (5) fuelling tubesheet; (6) endshield lattice tube; (7) fuel channel end fittings; (8) feeders; (9) calandria tubes; (10) shield tank solid shielding; (11) endshield steel ball shielding; (12) manhole; (13) pressure relief pipes; (14) moderator inlet pipes; (15) moderator outlet pipes; (16) reactivity control unit nozzles; (17) shutoff unit thimble; (18) liquid zone control unit thimble; (19) shield cooling system piping; (20) shield tank; (21) shield tank extension; (22) rupture disc; (23) moderator overflow pipe; (24) pipe to moderator inlet header; (25) inlet outlet strainer. (Luxat, 2009)

5.3.1 CANDU-6 cell review

Each cell of the lattice consists of a fuel bundle surrounded by two concentric pressure and calandria tubes. A cold low pressure D₂O moderator surrounds the calandria tube. A helium gas gap ensures insulation of the calandria tube from the hot D₂O coolant flowing in the pressure tube. A standard 37-element fuel bundle (1, 6, 12 and 18 UO₂ clad pins per annular ring) is used and is illustrated in Fig. 5.2. The D₂O moderator and coolant

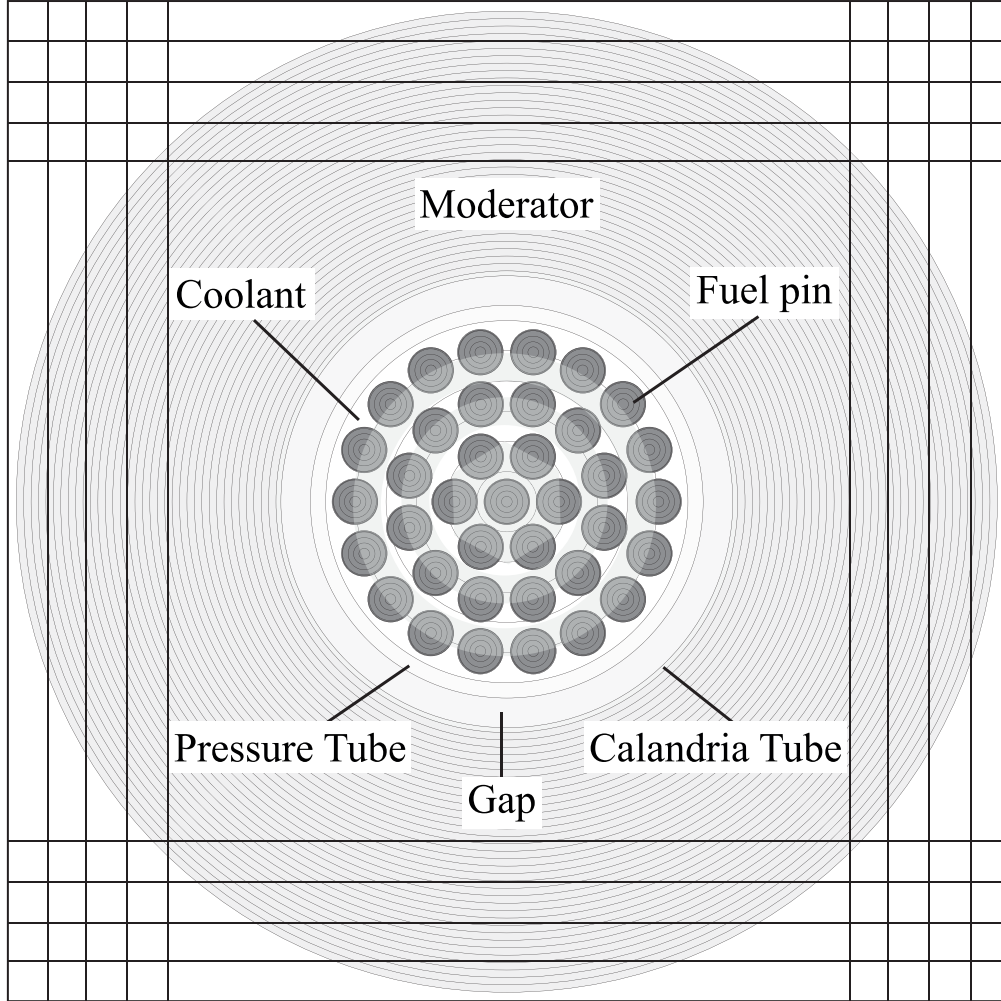


Figure 5.2 CANDU 37-element bundle cell.

purity are assumed to be, respectively, 99.92 at.% and 99.3 at.%. Table 5.1 lists, for the 6 claddings selected in this work, the material density (in g/cm³), macroscopic thermal capture cross section (Σ_c) ratio against Zircaloy-II (Σ_{c-Zr}) and isotopic compositions (in weight percentage). In our study, the reference zirconium alloy (Zircaloy-II) is compared with silicon carbide (SiC), ferritic iron chromium aluminum alloy (FeCrAl), Kanthal advanced powder

metallurgical (APMT), 304 and austenitic type 310 stainless steel (respectively 304SS and 310SS). These claddings were considered because of their high temperature steam oxidation resistance (Pint *et al.*, 2013, 2015) and significantly lower specimen mass change than Zircaloy (Ott *et al.*, 2014).

Table 5.1 Candidate cladding material properties.

Material	ρ_v [g/cm ³]	Σ_c/Σ_{c-Zr}	⁵⁶ Fe	⁵⁸ Ni	⁵² Cr	natB	⁹¹ Zr	²⁸ Si	¹² C	²⁷ Al	⁵⁹ Ni	⁵⁵ Mn	⁹⁶ Mo	¹⁷⁹ Hf
Zircaloy-II	6.44	1.000	0.16	0.06	0.11	0.00031	99.71	-	-	-	-	-	-	-
SiC	2.58	0.663	-	-	-	-	-	70.08	29.92	-	-	-	-	-
FeCrAl	7.10	1.956	75.0	-	20.0	-	-	-	-	5.0	-	-	-	-
APMT	7.30	1.996	69.79	-	21.60	-	0.10	0.53	-	4.9	-	-	2.92	0.16
304SS	7.90	2.408	71.35	-	18.9	-	-	0.42	-	-	8.35	0.70	0.27	-
310SS	8.03	2.735	52.55	-	25.22	-	-	0.7	-	-	19.51	1.9	0.122	-

Our first computation scheme is based on the lattice and supercell code DRAGON5 (Marleau *et al.*, 2018). The 2D cell calculations are first performed using a 172-groups JEFF-3.1 WIMSD-4 library (Koning *et al.*, 2006). The generalized Stamm’ler self-shielding approach (Hébert et Marleau, 1991) is applied to update the resonant isotopes microscopic cross sections. Using tracking and cross section information, the scattering-reduced collision probabilities are computed. The multigroup transport equation is solved using a B1 homogeneous leakage model and constant power fuel depletion of 31.9713 kW/kg is assumed. Cross sections are homogenized over the complete cell and condensed to 2 energy groups. ¹³⁵Xe production rate is followed and extracted during the complete burnup cycle. At each depletion step, all nuclear data are recovered and tabulated in a database as a function of global and local parameters (representing normal and accidental conditions). Global parameters (e.g. moderator purity, density or poison load) are CANDU lattice characteristics, while local parameters (e.g. temperatures, coolant density or neutron exposure rate) are homogenized bundle mixture characteristics (Marleau *et al.*, 2018).

The same ²³⁵U enrichment criteria suggested in the previous paper (Naceur et Marleau, 2018) for different claddings is considered in this study. Enrichment is increased in such a way that the bundle effective neutron multiplication factor (\bar{k}_{eff}) averaged over the complete cycle (300 days) is the same as the effective reference [UO₂, Zr]. Table 5.2 summarizes the converged results when the criticality criterion is satisfied for all cells. (e_{natU}) is the natural uranium enrichment, while (e_{enrU}) is the optimized fuel enrichment.

5.3.2 CANDU-6 supercell model

CANDU reactivity devices are associated either with the reactor regulating system (RRS) or the emergency shutdown system (ESS). There are 3 types of RRS devices: 6 liquid zone

Table 5.2 Cycle converged mean multiplication factor.

	Zr	SiC	FeCrAl	APMT	304SS	310SS
$\bar{k}_{\text{eff}}(e_{\text{natU}})$	1.026239	1.029790	0.922744	0.919418	0.899505	0.884282
$e_{\text{enrU}} [\%]$	0.711400	0.711400	1.049840	1.061905	1.132900	1.192371
$\bar{k}_{\text{eff}}(e_{\text{enrU}})$	1.026239	1.029790	1.026239	1.026239	1.026239	1.026239

controllers (LZC), each containing 2 or 3 compartments half-filled with demineralized H₂O, that provide the primary means for continuous power modulation in 14 zones of the core; 21 stainless steel adjuster rods (ADJ), grouped in 7 banks, that are normally inserted in the core to flatten the flux distribution; 4 mechanical control absorbers (MCA) normally withdrawn that can be dropped by gravity or with controlled speed to cause a quick power reduction or to deal with transient conditions. There are also 3 types of ESS devices: 28 shutoff rods (SOR), held above the core, that respond automatically to any failure or RRS loss by making the reactor highly subcritical while maintaining cooling capabilities; 6 gadolinium nitrate poisoning nozzles (GPN), passing horizontally through the core, that act as a redundant ESS making immediate recovery impossible; boron poisoning nozzles (BPN) to control fresh fuel excess reactivity¹ (St-Aubin et Marleau, 2015a). Both RRS and SOR devices are vertical (Y-axis), while GPN and BPN are horizontal (X-axis). Thus, an appropriate 3D transport calculation is needed to model these devices. The 3D supercell model consists of two horizontal fuel bundles that surround the reactivity device in a 3D Cartesian mesh, as depicted in Fig. 5.3. The 3D transport equation is solved using the collision probability method (CP) with the device in the inserted (*in*) and extracted (*out*) positions. Homogenization is performed over the complete supercell volume. For each reaction of type x , 2-group condensed and homogenized incremental cross sections $\Delta\Sigma_x^g = \Sigma_x^{g,\text{in}} - \Sigma_x^{g,\text{out}}$ and diffusion coefficients ΔD^g are computed and stored in a second database. The same properties are generated for all CANDU reactivity and structure materials present under normal operating conditions. For the LZC, the inserted position corresponds to 2 successive 3D transport computations, where the compartments are filled with air and with light water (H₂O) (St-Aubin et Marleau, 2015b) The devices and structures considered are:

- LZC, ADJ, MCA, SOR, GPN, BPN, VFD (vertical flux detectors) and HFD (horizontal flux detectors) brackets and locators;
- ADJ, MCA, SOR, GPN, BPN, VFD and HFD Zircaloy guide tubes;
- LZC, ADJ, MCA and SOR coupling nuts and tensioning springs;
- ADJ supporting bars and cables;

1. The boron injectors are outside the reactor core.

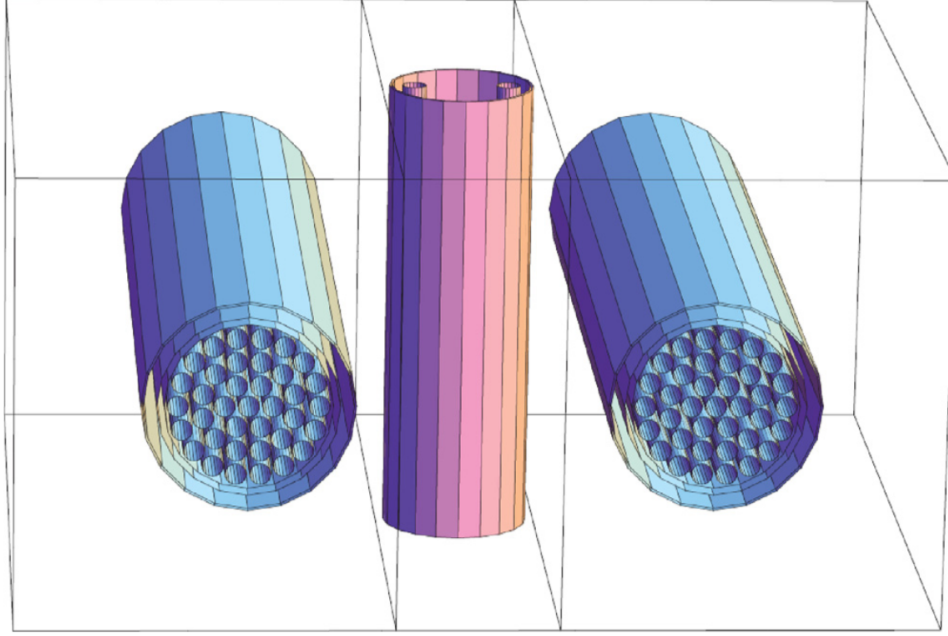


Figure 5.3 CANDU supercell model for reactivity devices.

- 8 moderator injectors.

5.3.3 CANDU-6 full core model

A 3D Cartesian mesh is used to represent the reactor 4560 fuel bundles, the D₂O radial reflector, the reactivity control devices and the reactor pressure vessel. Fig. 5.4 illustrates the central axial cut of a CANDU-6. The minimal discretization consists in considering only one region (kj) per fuel bundle (bundle k of channel j), which lead to 12 planes all 49.53 cm thick along the Z -axis. A finer mesh subdivision is introduced along the X and Y -axis where the bundle volumes are split in such a way that reactivity device limits match the mesh limits. The exact configuration of the 380 channels is respected, as well as possible when approaching the cylindrical boundary, by using regions of varying heights and widths for the reflector. Some fictive volumes are then added to complete a 3D rectangular prism with 8112 regions (St-Aubin, 2013). Regions crossing the calandria boundary see a zero incoming flux boundary condition.

All fuel channels are grouped into 3 combustion zones (low, medium and high). The original fuel map is then modified by superimposing the reactivity mechanisms and the structural materials. RRS and ESS devices are introduced independently as 3D boxes of width 28.575 cm (in x) by 49.53 cm (in z) and of varying heights (in y) (St-Aubin, 2013). Here, all devices

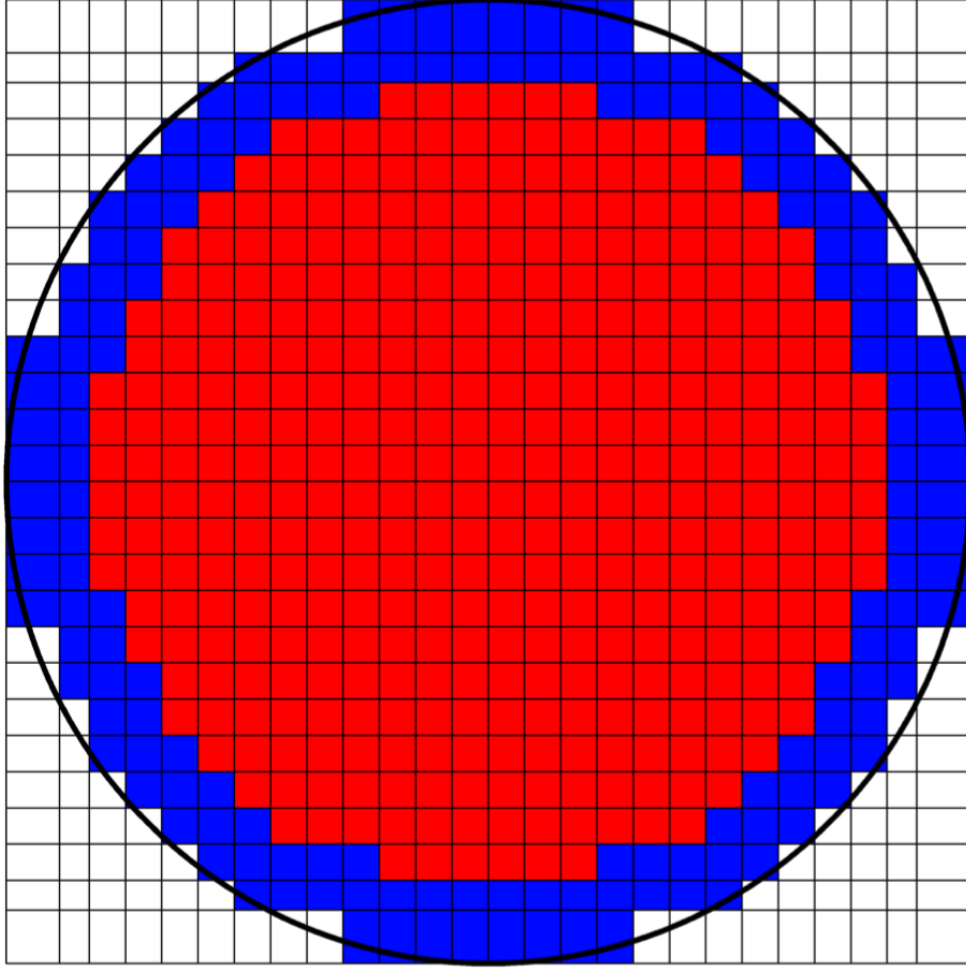


Figure 5.4 CANDU reactor mesh along xy plans. *Red: fuel regions; Blue: reflector; Black line: calandria boundary; White: regions outside the core* (St-Aubin, 2013).

have time-dependent displacements and can be used in transient simulations. For regulating purposes, ADJ can be inserted or extracted, individually or per groups, at constant or variable speeds. LWC water filling level and rate can also be controlled at every moment in each one of the 14 control zones (Hébert *et al.*, 2018). The device position (y) is then recomputed. Day-by-day, the instantaneous fuel bundle burnup (\mathcal{B}_{kj}) is computed and the core nuclear data are updated using the reactivity devices actual positions as: $\Sigma_{x,kj}^g = \Sigma_x^g(\mathcal{B}_{kj}) + \Delta\Sigma_{x,kj}^g(y)$. Fig. 5.5 depicts the configuration of the reactivity devices in the xz -plane.

Our third step is based on the 3D full-core simulation code DONJON5 (Hébert *et al.*, 2018). DONJON5 is designed around advanced discretization algorithms and iteration strategies programed in the TRIVAC multigroup diffusion solver (Hébert, 1987).

Once the fuel (burnup-dependent), reflector, reactivity devices and structure materials databases

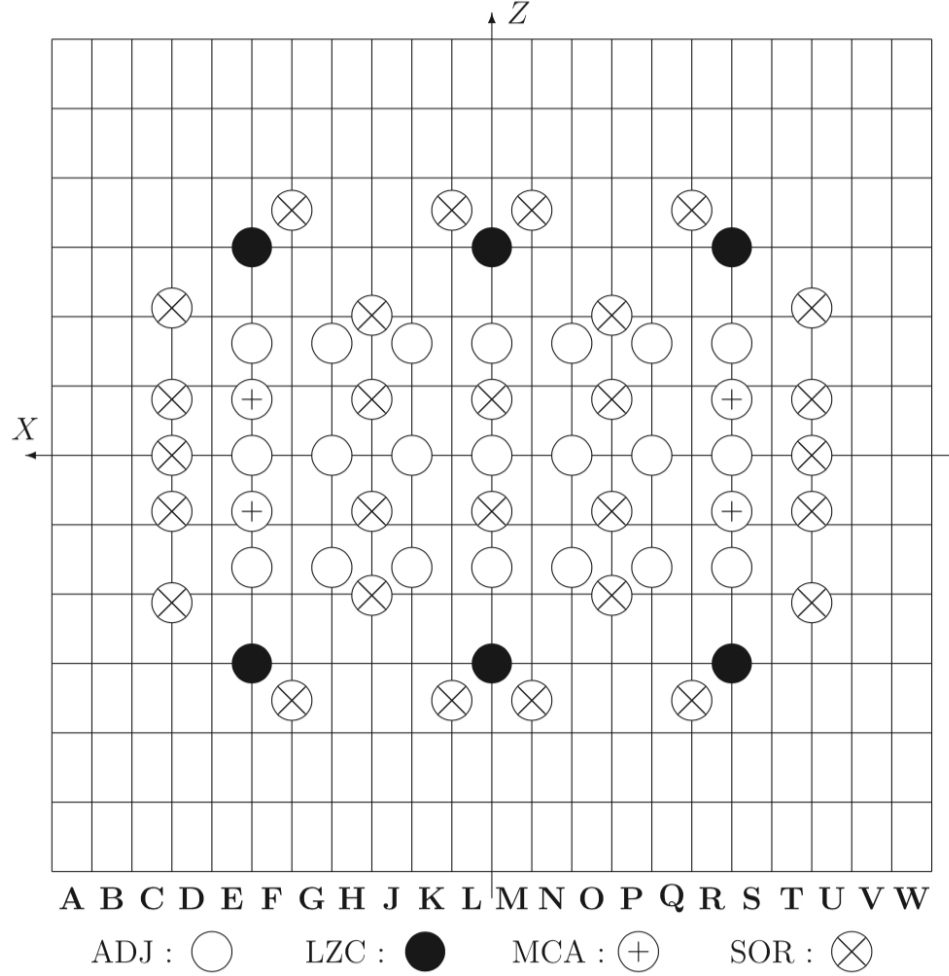


Figure 5.5 CANDU reactivity device configurations in the xz -plane (St-Aubin et Marleau, 2015a).

are available, the CANDU-6 core follow-up can be considered. CANDU-6 geometry is first constructed plane-by-plane, each mesh region being linked to a specific material mixture. 3D tracking is then performed using a mesh centered finite difference approximation. Devices, structure materials and detectors are then superimposed on the fuel lattice. ADJ (and LZC) are immediately grouped into specific banks (and zones) for regulating purpose. An instantaneous burnup model is selected with the specified core global parameters and bundles local parameters and the fuel map object is constructed. Although the on-power refueling requires information about the bundle exact position, some core regions may contain mixed fuel and reflector parts. The fuel map allows us to associate fine geometric resolution and bundles definition (functions of power and burnup) (Varin *et al.*, 2004). Two macroscopic libraries are first generated where the reflector properties are first built from the multi-parameter

DRAGON database and bundle nuclear properties are computed with local parameter interpolations. A third macroscopic library is generated after interpolation of reactivity devices and structure materials databases. A complete library is finally built containing every material region properties, over the whole mesh-split core geometry. TRIVAC modules (Hébert, 2017) are sequentially called to compute the finite element system matrices and solve the eigenvalue problem. Fluxes are converged with a relative precision of 10^{-6} . Fuel bundle average fission power is fixed at 615 kW, typical of the CANDU-6 producing 2061.4 MWth. A typical burn step of 2 full-power days (FPD) is selected during the cycle.

5.3.4 Core refueling sequence

For operating CANDU reactors, the list of channels to be refueled is generally based on the core actual history tracking, the on-line flux mapping system, the in-core detector readings, the LZC water fills (Rouben, 1997) and the bundle history effect (Varin et Marleau, 2006). Several criteria, which are often difficult to satisfy at the same time, must be prioritized by the reactor operator. An engineering judgment is then needed. Rouben (2014) shows that a good combination of channels due to be refueled will typically contain:

- (a) channels for which the time since the last refueling has almost reached the channel dwell time ;
- (b) channels containing bundles with a high current burnup;
- (c) channels with low power and/or being in a low power zone;
- (d) channels which, selected together, ensure an instantaneous power distribution similar to the reference power shape and preserve axial, radial and azimuthal flux and power symmetry;
- (e) channels being mutually widely/reasonably separated to avoid power peaks and hot spots;
- (f) channels which will leave the LZC filling level in an acceptable range [20%, 70%]; and
- (g) channels which, taken together, provide exactly the balance needed to compensate the daily reactivity loss (i.e. which tend to leave the RRS in the desired operational range and positions).

This said, even if the inner core regions have the highest burnup levels, only some of the channels in this region will be refueled. Secondly, not all the channels at the same radial position can be refueled simultaneously; a burnup distribution is required. Thirdly, close-neighbor channels are not to be refueled very closely in time. One method that was suggested by Rozon et Shen (2001) and recommended by Rouben (2014) is to define an *intelligent pattern* based on the CANDU channel age model (Wight et Sibley, 1977; Rouben, 1995). The channel age is the channel instantaneous fraction achieved in irradiation since the last

refueling; it can be used to define a particular refueling history. The first step is to implement the channel refueling order pattern in a very small core region (e.g. 6-channels-by-6-channels). The second step is to subdivide the CANDU core into 6×6 blocks and to start selecting channels intelligently in a sequential way by browsing all regions. The condition is that “[...] whenever revisiting each 6×6 region the order within the region follows the pattern defined for the 6×6 square” (Rouben, 2014). The core refueling sequence obtained is presented in Fig. 5.6.

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22
A									358	91	39	67	162	234								
B						315	113	294	196	248	366	309	109	287	191	245	363					
C					59	33	208	346	19	219	61	25	202	340	14	213	55	31				
D				271	322	123	261	103	156	273	323	118	254	97	149	265	318	122	260			
E			333	7	184	51	377	135	334	8	185	44	371	172	327	1	179	50	376	133		
F			176	145	283	226	301	79	173	142	279	232	307	86	177	147	285	228	303	81		
G		241	360	93	40	69	164	236	353	88	37	76	171	243	361	95	42	71	166	238	355	
H		296	198	250	267	311	110	289	193	246	364	316	116	298	200	252	369	313	112	291	195	
J	210	348	21	221	63	27	204	342	16	215	57	35	211	350	23	223	65	29	206	344	18	217
K	262	105	158	275	324	119	256	99	151	267	319	125	263	107	160	276	325	121	258	101	153	269
L	278	137	336	10	187	46	372	129	329	3	181	53	379	139	338	12	189	48	374	131	331	5
M	292	72	167	132	270	224	299	77	172	140	277	216	290	70	165	130	268	222	297	75	170	138
N	154	229	345	82	30	66	161	233	351	87	36	58	152	227	343	80	28	64	159	231	349	85
O	102	281	183	239	356	308	108	286	190	244	362	302	100	280	182	237	354	306	106	284	188	242
P		332	6	207	49	24	201	339	13	212	54	17	194	330	4	205	47	22	199	337	11	
Q		90	144	259	314	117	253	96	148	264	317	111	247	89	143	257	312	115	251	94	146	
R			321	375	175	43	370	126	326	380	178	38	365	120	320	373	174	41	368	124		
S			168	134	272	214	288	68	163	128	266	220	295	74	169	136	274	218	293	73		
T				83	32	56	150	225	341	78	26	62	157	230	347	84	34	60	155			
U				357		300	98	278	180	235	352	305	104	282	186	240	359	304				
V						15	192	328	2	203	45	20	197	335	9	209	52					
W									141	255	310	114	249	92								

Figure 5.6 Core refueling sequence selected.

5.4 Results

5.4.1 Fresh fuel k_{eff} depletion results

During normal operation of a CANDU reactor, LZC compartments are half filled, ADJ are fully inserted in the core, MCA and ESS devices are withdrawn. Fig. 5.7 shows the core effective multiplication factor (k_{eff}) evolution during the first operation cycle (initially contains only fresh fuel). Fig. 5.8 depicts the difference in the core k_{eff} between the alternate cladding material and Zircaloy-II. Table 5.3 lists the core excess in reactivity $\rho = (k_{\text{eff}} - 1)/k_{\text{eff}}$ at some selected times in full-power days (FPD). At the beginning of the cycle (BOC), a large reactivity difference ($\Delta\rho$) is found between the cores with bundles cladded with Class I materials (Zr, SiC) and those with Class II materials (FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS). Because ^{235}U is the only fissile nuclei present in freshly fueled CANDU's bundles, the core excess reactivity reflects exactly the bundles' enrichment level (Table 5.2), which in turn reflects the claddings' thermal neutron capture probabilities (Table 5.1). While the initial average reactivity difference ($\bar{\Delta\rho}$) between Class II systems and Zircaloy is of the order of 25.1 mk at BOC, it is reduced to 4.4 mk at middle of the cycle (MOC) and is negative (−4.1 mk) at the end of a cycle (EOC). For Class I materials, the core reactivity decreases rapidly until 10 FPD, then starts increasing until it reaches a maximum between 35 and 40 FPD, known as the plutonium peak. ^{239}Pu increases the core reactivity as it is produced. The observed time lag is due to some accumulation effect following the 2.4-days half-life of ^{239}Np the immediate ^{239}Pu parent (Garland, 2014). ^{239}Pu peak is 3.34 mk higher in SiC cladded core, which decreases the fuel delayed neutron fraction. A faster acting regulation system than for Zircaloy should be introduced. The core power may be reduced further until ^{239}Pu level is stable (Woddi *et al.*, 2009). For Class II materials, no ^{239}Pu peak is observed. This is due to the fact that the ^{238}U radiative captures (original ^{239}Pu parent) are 100 times less likely to occur than ^{235}U thermal absorptions. As a result, ferritic and steel-cladded bundles will have a higher probability of fissile nuclei consumption than fissile nuclei production. Captures in fertile nuclei cannot balance ^{235}U burnup. After 50 FPD, all core reactivities

Table 5.3 Core excess in reactivity at some selected periods.

	Zr	SiC	FeCrAl	APMT	304SS	310SS
ρ (0 FPD) [mk]	+63.7	+67.0	+87.3	+87.9	+89.4	+90.4
ρ (135 FPD) [mk]	+0.03	+3.37	+4.51	+4.65	+5.56	+5.18
ρ (150 FPD) [mk]	−6.34	−2.97	−2.42	−2.29	−1.76	−1.34
ρ (300 FPD) [mk]	−71.3	−67.7	−75.7	−75.7	−75.3	−74.8

decrease monotonically as irradiation progresses. ^{235}U is continuously consumed and the ^{239}Pu can no longer compensate the increasing fission products load. This behavior can be confirmed by the bundle thermal-group fission yield cross section ($\nu\Sigma_f^2$) shown in Fig. 5.9 (*left*) and the bundle thermal group absorption cross section (Σ_a^2) shown in Fig. 5.9 (*right*).

It is also observed in Fig. 5.8 that steel (or ferritic) cladde cores is more supercritical than the silicon cladde core up to the 190th day (165th day) and continues to dominate the CANDU reference core until the 250th day (235th day). Reaching these burnup levels, the ^{235}U fission rate can no longer compensate the cladding neutronic penalties. Using the less absorbing SiC cladding permits CANDU operation with natural uranium and produces at least 3.39 mk higher $\overline{\Delta k_{\text{eff}}}$ than Zircaloy-II.

5.4.2 Required poison concentration

The different fresh fuel excess reactivities presented in Table 5.3 must be compensated in a controlled manner. Natural Boron (20% ^{10}B) is added to the moderator to control the reactor BOC reactivity worth. Several iterations were needed in DRAGON-DONJON calculations chain to achieve criticality in diffusion results. A convergence criterion of 0.01 mk is selected for each system investigated. Table 5.4 presents the required boron concentration when the core criticality is reached. When the fuel is more enriched, the initial moderator system is more poisoned. Only 0.1 ppm larger boron concentration than the actual CANDU-6 conditions is needed for the silicon system. For the ferritic and the steel-cladde cores, the increase in boron concentration is from 11 to 13 times higher (still considerably lower than for PWR). Contrarily to what the insertion (or removal) of an RRS device shows, it was verified that no distortion in the flux distribution is observed. This observation is mainly due to the solubility of the introduced boron. The boron reactivity effect is then homogeneously distributed in the calandria. As the excess reactivity gradually drops, boron concentration decreases. The

Table 5.4 Required boron concentration at BOC.

	Zr	SiC	FeCrAl	APMT	304SS	310SS
$k_{\text{eff}} ([\text{B}^{10}]=0)$	1.0679997	1.0718225	1.0956892	1.0963252	1.0981975	1.0993868
Boron $[\text{B}^{10}]$ (ppm)	1.63663	1.73085	2.78023	2.81207	2.94408	3.04740
Boron $[\text{B}^{10}]$ ($\times 10^{16}\text{at}/\text{cm}^3$)	9.876864	10.44544	16.77831	16.97051	17.76716	18.39070
$k_{\text{eff}} ([\text{B}^{10}]\neq 0)$	1.000001	1.000009	1.000002	1.000003	1.000001	1.000003

ion exchanger resin removal rate should be tested with the new fuels. One way to make sure that the boron concentration is exactly the required concentration is to ensure that LZCs filling levels remain in an acceptable range (Bieman et Bird, 1992).

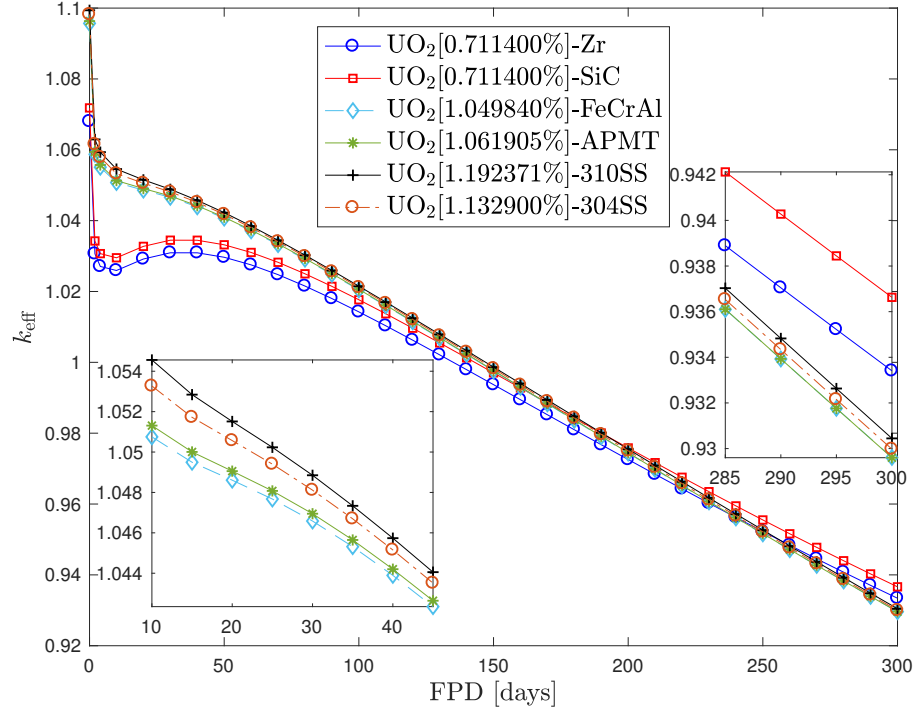


Figure 5.7 Effective multiplication factor vs. core full-power days for various cladding candidates.

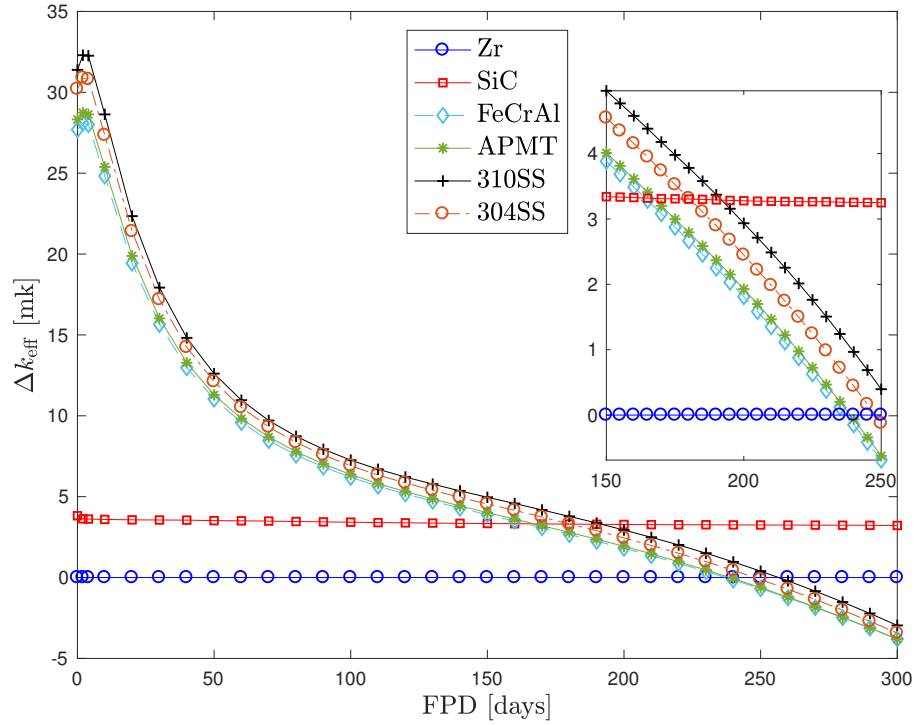


Figure 5.8 Δk_{eff} from Zircaloy-II vs. core full-power days for various cladding candidates.

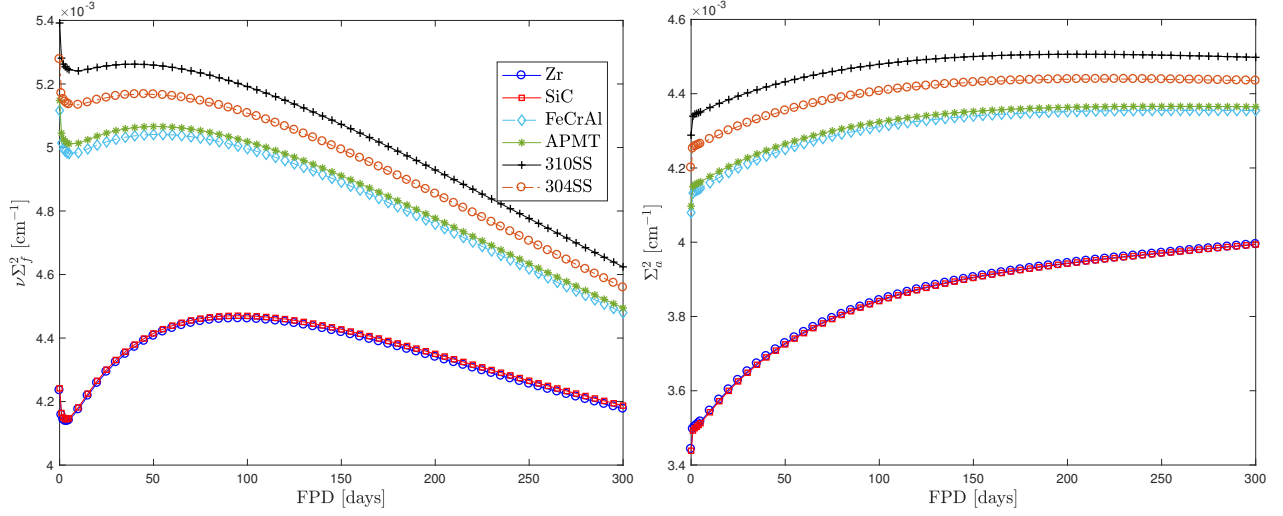


Figure 5.9 Thermal-group fission yield cross section (*left*) and thermal-group absorption cross section (*right*).

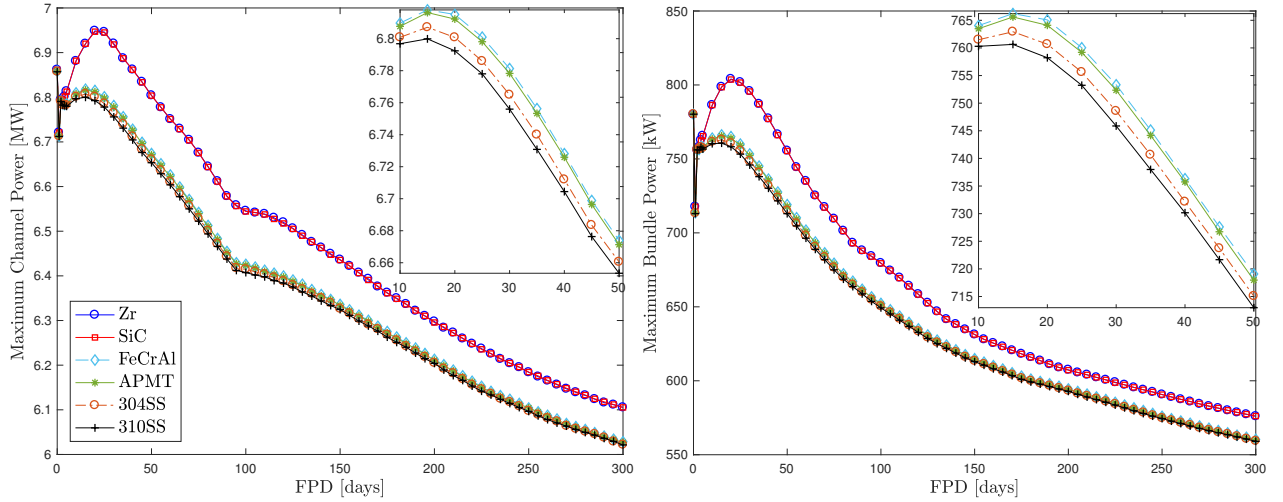


Figure 5.10 Maximum channel powers (*left*) and maximum bundle powers (*right*) vs. core full-power days.

5.4.3 Power profiles

Energy conversion factors² and H-factors³ are used to compute the bundle powers that are normalized in such a way that the overall reactor power is 2061.4 MWth (Varin *et al.*, 2004). At every time steps, previous bundle burnups and powers are recovered to compute the

2. MeV/MJ

3. Bundle H-factor is “the recoverable energy from neutron-induced reactions” (Hébert, 2016) and is computed as “the sum of all cross sections producing energy times the energy produced by each reaction” (Marleau *et al.*, 2018).

new core's property distribution. Fig. 5.10 shows the maximum channel and bundle powers generated during the complete cycle. Fig. 5.11 depicts the channel power profile as a function of the horizontal radial distance (in terms of fuel channel positions) at 35 FPD and 100 FPD for some selected rows (see Fig. 5.6 for row and column identification). Fig. 5.12 illustrates, for plane $z = 6$ at 35 FPD, the bundle power distribution as a function of the horizontal radial distance x and the vertical inter-bundles distance y (both in terms of fuel bundle positions).

The power radial and axial profiles show that all systems respond in a similar way to the CANDU known distributions (Rouben, 1997; Garland, 2014). The channels (and the bundles) with the highest powers are exactly in the same locations for all the cores under study. The radial (and axial) power increases towards the center of the core and decreases as one approaches the core periphery. The fuel is fresh so all cores show a higher fission rate in the core center and therefore the core internal regions burn at a higher rate. The different power depressions are mainly governed by the reactivity devices. For a uniformly fueled reactor without reactivity control devices, the radial flux distribution is the Bessel J_0 function, while the axial flux distribution corresponds to a cosine shape. Thus, power quickly decreases from the core center. Consequently, a high-localized bundle or channel power, exceeding the plant's operating license limits, may appear (Glasstone et Sesonske, 2012; Rouben, 2014). Control rods flatten and redistribute the power so that more channels (radially) and bundles (axially) contribute significantly to power. The overall global power remains constant while the local power limits are respected (Rouben, 2014). From Fig. 5.11 and Fig. 5.12, *left*, we conclude that the degree of radial flattening is satisfactory for all systems. As one moves away from the reflector, a power gap is formed between cores clad with Class I materials and those with Class II materials. Channel (or bundle) powers can be 245.8 kW (53.8 kW) higher in Zr and SiC sheathed cores than in ferritic and steel-sheathed cores. Although ^{235}U enrichment levels (Table 5.2) and fission rates (Fig. 5.9, *left*) are higher in 310SS and 304SS clad cores, local powers are found to be lower when compared to APMT and FeCrAl systems. This is mainly due to a spectrum hardening effect, as discussed in Section. 5.4.4. At the ^{239}Pu peak (35-40 FPD), Zircaloy maximum channel (or bundle) power exceeds the silicon system only by 1.45 kW (0.316 kW). SiC and Zr systems adopt the same power distributions because their flux distributions and fission yields are almost identical. Fig. 5.10 shows that operations are in compliance with the licensed maximum bundle and channel power which are respectively 935 kW and 7.3 MW for a CANDU-6 using the 37-element fuel bundle (D'Antonio et Donnelly, 1997). The time-averaged maximum channel and bundle power differences between the reference system and steel-clad (304SS and 310SS) systems are respectively 106.4 kW and 22.6 kW. These differences are reduced to 95.5 kW and 20.3 kW when the reference system is compared to the iron-clad (FeCrAl and APMT) cores.

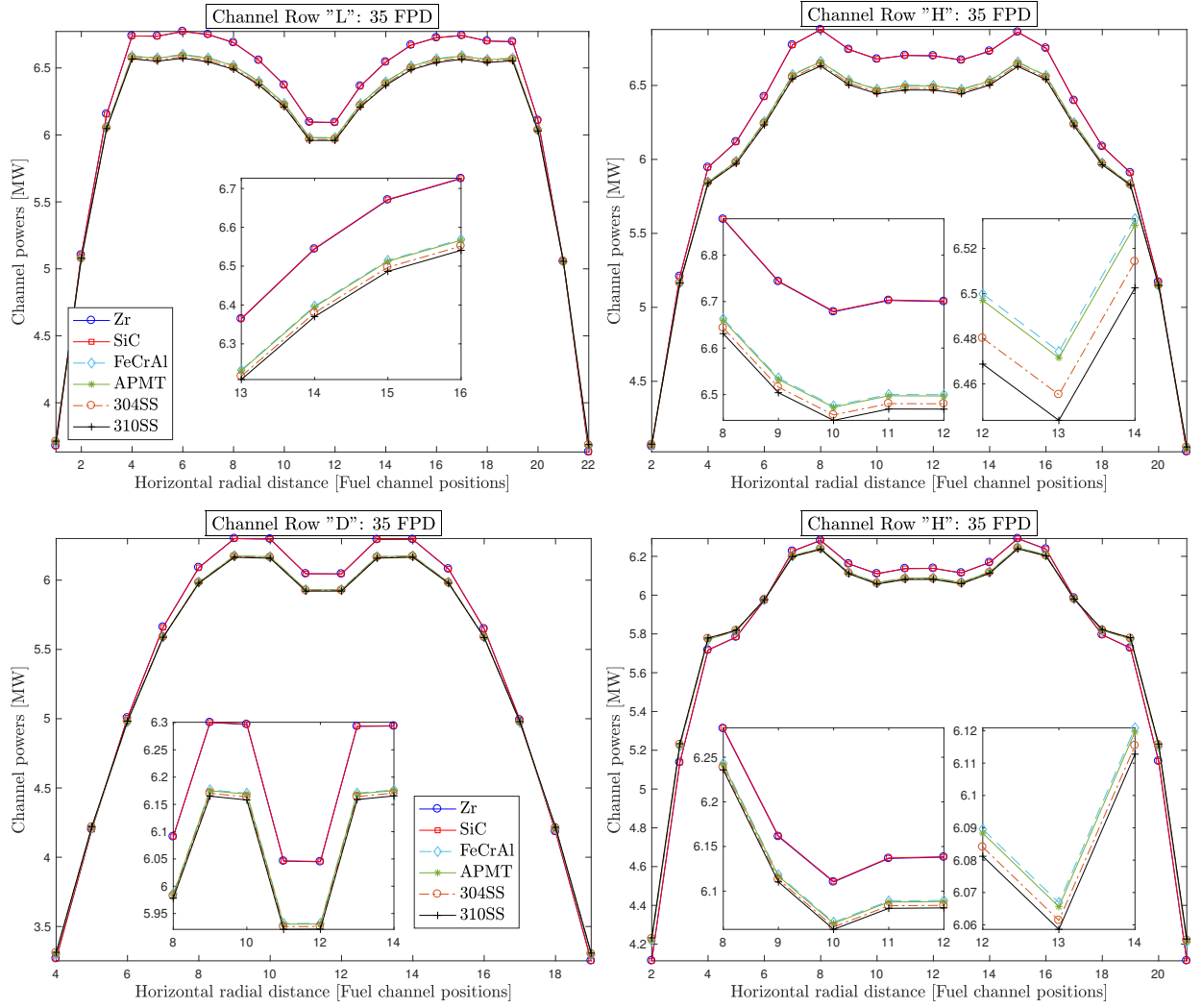
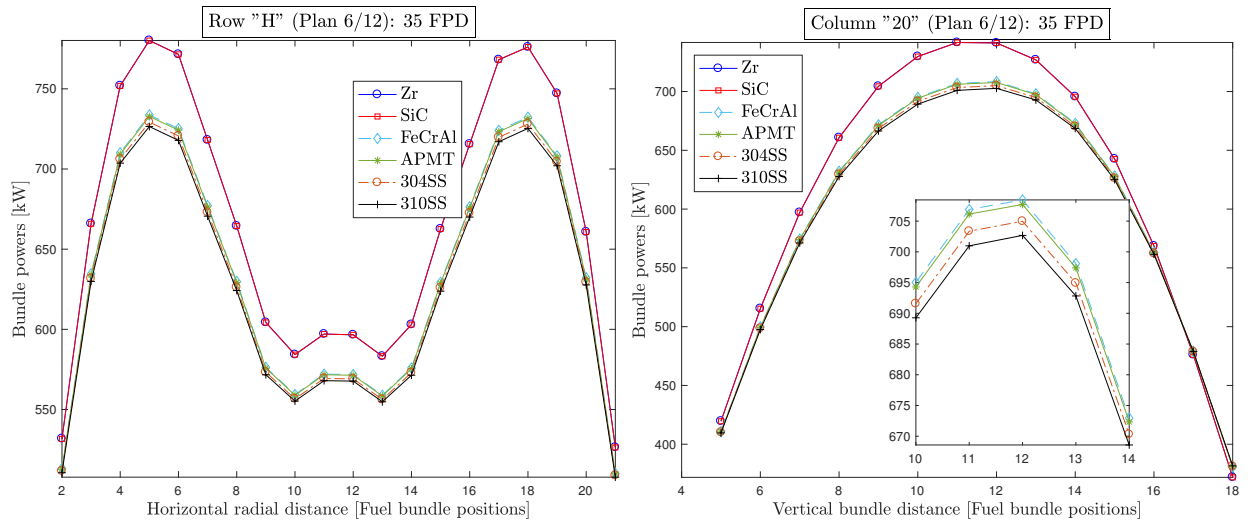


Figure 5.11 Radial channel power distribution.

Figure 5.12 Bundle power distribution at 35 FPD for plane $z = 6$ as a function of horizontal distance x in row "H" (left) and vertical distance y in column "20" (right).

5.4.4 Thermal flux distribution

Fig. 5.13, Fig. 5.14 and Fig. 5.15 compare the thermal flux distribution between Class I and Class II-cladded cores at BOC, at 35 FPD (plutonium peak for Class I claddings) and just before refueling starts (100 FPD), respectively. Flux distribution differences between Zircaloy and silicon-cladded systems are below 0.3%, while they are less than 4.5% between ferritic and steel-cladded cores. Such differences cannot be visually ascertained. For this reason, only one distribution per cladding Class is presented at each figure. The height of 598.305 cm represents the reactor's upper periphery. The other two heights, 152.535 cm and 276.360 cm, respectively illustrate the systems' responses in the presence of 7 half-filled LZC devices and 2 fully inserted ADJ banks. Fig. 5.13-5.15 show that the flux distribution symmetry is preserved. Fig. 5.14-5.15 show, that regardless of the inserted device type (LZC or ADJ) or number, the degree of radial flux flattening remains the same for all claddings. At each time step, the core hottest and coldest points are found at exactly the same place in every system investigated. At 35 FPD, the thermal neutron flux at the core hottest point is found to be respectively 19.81% and 18.31% lower in the 310SS and 304SS-cladded cores than in the CANDU reference system. These differences are reduced to 16.52% and 16.06% when compared to the APMT and FeCrAl-cladded cores. Changes in the thermal flux are only 0.26% when the Zircaloy system is compared with the silicon one.

These flux differences remain very similar throughout the cycle in the inner and the outer reactor regions. The iron and steel-cladded cores' thermal flux deviate from the CANDU known distribution toward the high energy region because thermal absorption cross sections are larger. The cladding with the highest radiative capture rate (Table 5.1) is the most absorbent bundle in the thermal group (Fig. 5.9, *right*). The same cladding induces the most important spectrum hardening effect (Fig. 5.13 and Fig. 5.15). A higher spectrum hardening is seen for the bundle and channel with lowest power (Fig. 5.11 and Fig. 5.12). This is expected for thermal neutron reactors where the power distribution within the core is:

$$P(\vec{r}) = \kappa \sum_g \Sigma_f^g(\vec{r}) \phi^g(\vec{r}) \quad (5.1)$$

with \vec{r} the bundle spatial coordinates and κ (about 200 MeV) the energy released per fission. An increase in reactivity is observed in Class II systems (Fig. 5.7 and Table 5.3) as a result of the ^{235}U enrichment, which gives a higher fission to absorption ratio

$$R_{f/a} = \frac{\int \nu \Sigma_f(E) \phi(E) dE}{\int \Sigma_a(E) \phi(E) dE} \quad (5.2)$$

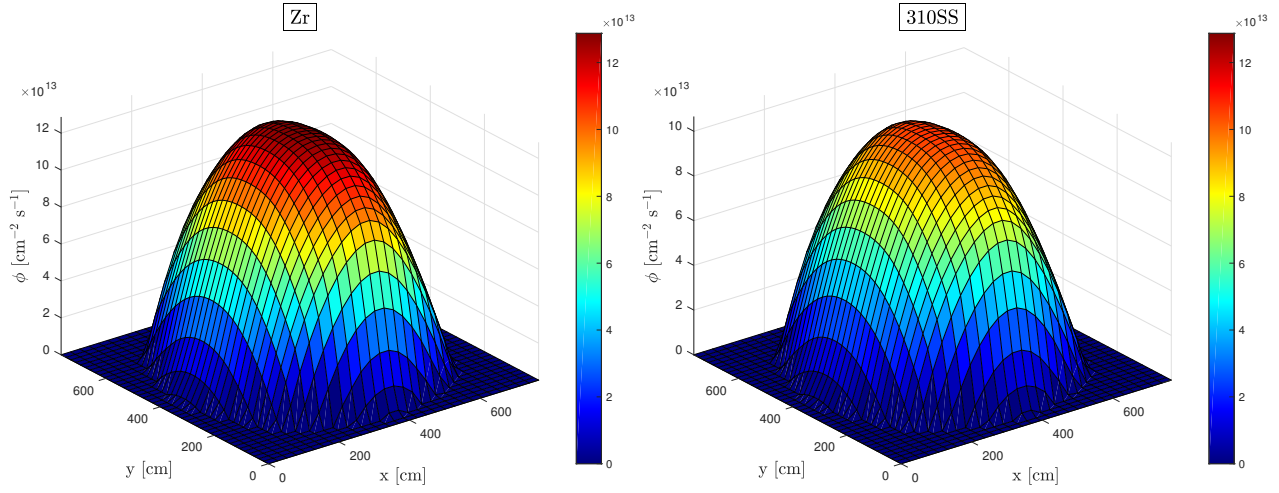


Figure 5.13 Thermal flux distribution at BOC at 598.305 cm height.

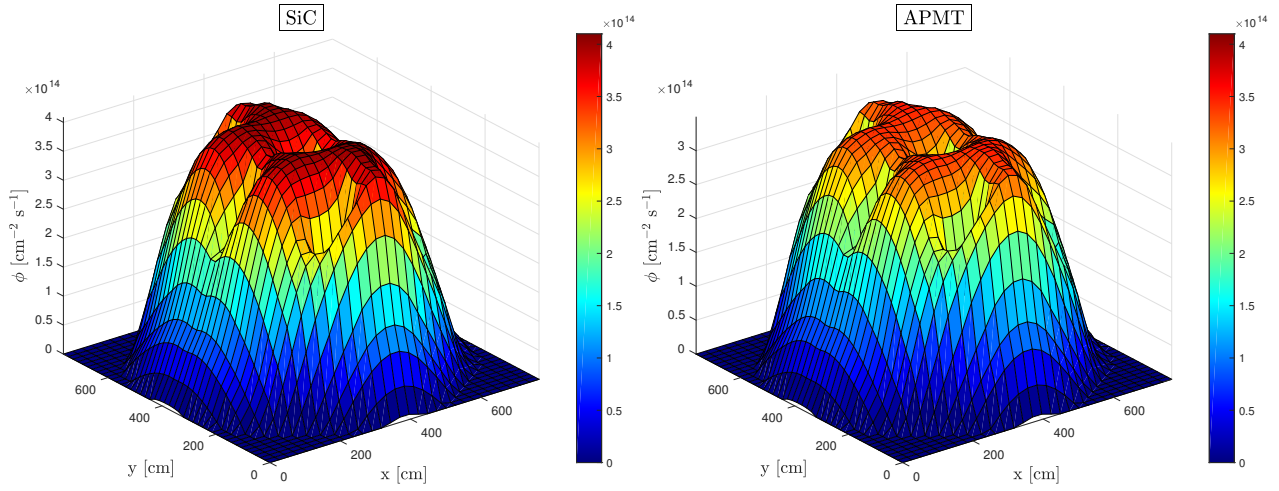


Figure 5.14 Thermal flux distribution at 35 FPD at 152.535 cm height.

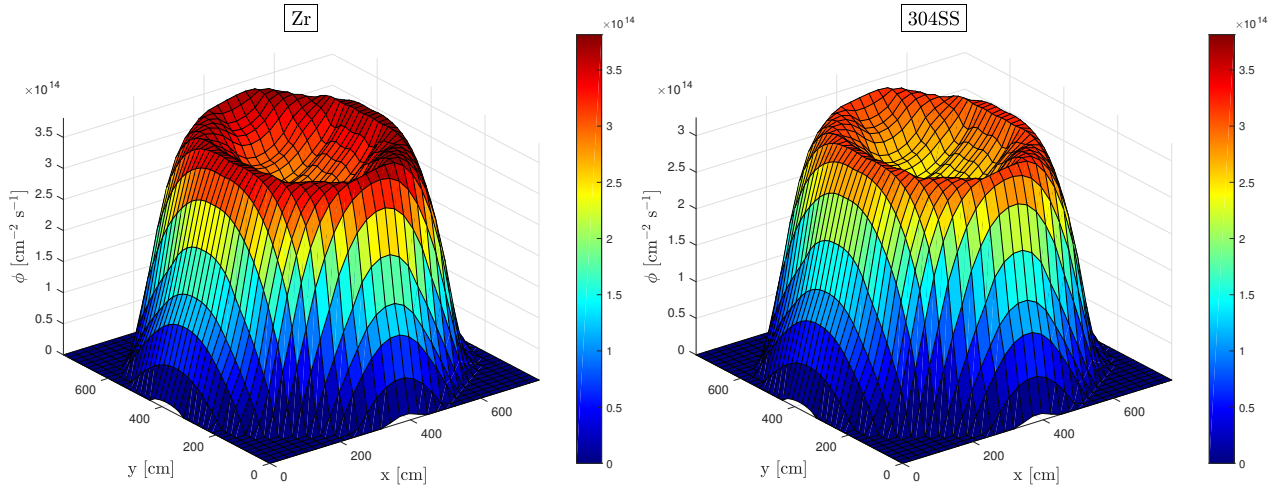


Figure 5.15 Thermal flux distribution at 100 FPD at 276.360 cm height.

without necessarily having a higher flux distribution. Class II neutronic penalties harden the flux spectrum which results in a lower ^{239}Pu production rate and a lower ^{239}Pu resonance contribution (0.295 eV). Despite the higher criticality, the system reactivity is more quickly reduced (Fig. 5.7) and the local bundle powers and burnups are lower (Fig. 5.12).

5.4.5 Core refueling

Fueling machine maintenance and operating costs are minimized when the channel-visit rate is reduced. Increasing the number of bundles loaded per channel visit is then desirable. It is also not possible for a refueling machine to maintain, for several days, a very high-refueling rate (e.g. 6 channels refueled per day) (Rouben, 2014). Here, 4 channels are refueled per day with an 8-bundle-shift scheme, where 8 high burnup bundles (near the outlet end) are discharged and 4 low burnup bundles (previously near the inlet end) are displaced towards the outlet end by inserting 8 fresh fuel bundles. This scheme is an excellent compromise between increasing the bundle discharge burnup and reducing the channel-visit rate (Rouben, 1997). Bundles moved from low to high-power locations may suffer a cladding rupture leading to undesirable fission products release; such movement should be tested with ATF cladding concepts before implementation.

First, the turn-point day t_p for which every system becomes subcritical is determined. Secondly, refueling is started 10 FPD before the reactor reaches t_p . This time gap avoids a high refueling rate in the first few days and avoids suddenly draining the LZC compartments or removing too rapidly the boron from the moderator. The CANDU's operating license limits are then fully satisfied. The fueling pattern (Fig. 5.6) is subsequently executed and refueling operations are carried out daily. The reactor has operated for a total of 300 FPD (including the period before refueling). Table 5.5 lists the refueling results during one complete operation cycle, with $N_{\text{chan}}^{\text{refueled}}$ the number of fuel channels refueled. Fig. 5.16 shows the core reactivity evolution from the fueling point until 300 FPD. Due to the core reactivity

Table 5.5 Refueling details for one-cycle CANDU-6 operation.

	Zr	SiC	FeCrAl	APMT	310SS	304SS
Turn point (t_p) [days]	136	144	146	146	148	146
$k_{\text{eff}}^{\text{non-refueled}}(t_p)$	0.99987	0.99984	0.99957	0.99970	0.99969	0.99975
$k_{\text{eff}}^{\text{non-refueled}}(t_p - 1)$	1.00029	1.00027	1.00003	1.00017	1.00016	1.00022
Fueling point (t_f) [days]	126	134	136	136	138	136
$k_{\text{eff}}^{\text{refueled}}(t_p)$	1.00158	1.00184	1.00362	1.00379	1.00413	1.00448
$N_{\text{chan}}^{\text{refueled}}$	380+312	380+280	380+272	380+272	380+264	380+272

around 135 FPD (see Table 5.3), the refueling of SiC, (FeCrAl, APMT, 304SS) and 310SS clad systems start, respectively, 8, 10 and 12 days after the scheduled date for refueling the current CANDU-6 reactor. All systems respond in the same way and 3 main periods can be distinguished. The first period corresponds to a reactivity decline during which the new fuel bundles loaded are not able to counterbalance the burnup effect. The insertion of these bundles just slows down the rate at which k_{eff} decreases. This period lasts 32 days for

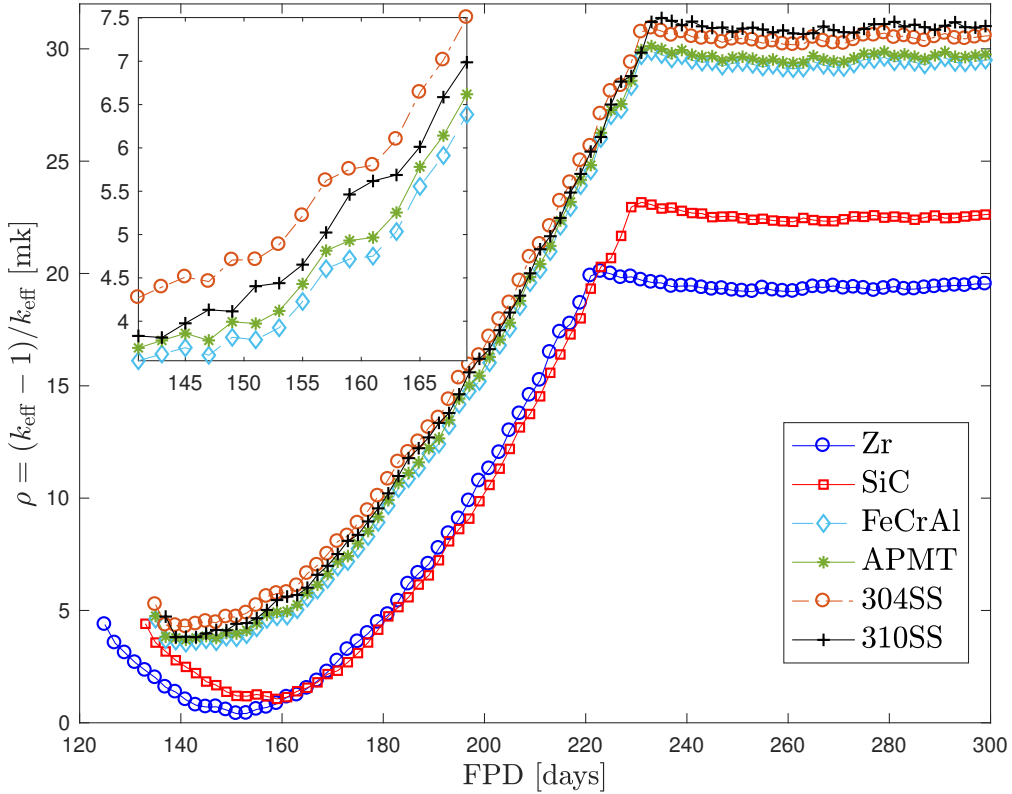


Figure 5.16 Reactivity vs. full-power days after refueling operations start.

Zircaloy-II versus 26 days for silicon, and 6 days for both steel and iron systems. The time observed for Zircaloy is the typical delay for the plutonium peak appearance. We conclude that 1% of ^{235}U enrichment makes it possible to shorten this period from more than one month to less than one week. During the second period, the effect of fresh bundles outweighs the total spent fuel burnup effect. Reactivity increases day by day due to continuous refueling of depleted fuel. Silicon and Zircaloy-II adopt a very similar behavior during this period (only 0.58 mk difference). This period is longer for enriched cores and provides an additional reactivity of 5 mk, on average, when compared to cores clad with Class I materials. The last period, corresponding to the time averaged core behavior, then sets in during which k_{eff} keeps a relatively constant value. The local fluctuations are due to the discrete nature of

CANDU refueling. The first two periods are called transitional or pre-equilibrium conditions (Rouben, 1997), while the third is assimilated with the CANDU equilibrium core. Despite the local ripples, the global core-average characteristics (e.g. channel power distribution and average bundle burnup distribution) have reached steady state, the discharged bundle burnup and the boron concentration are essentially constant.

If the refueling operations are not interrupted, the systems based on silicon, iron and steel alloys continue to operate, respectively, with 5 mk, 10 mk and 11 mk more reactivity than the current CANDU-6 reactor. These reactivities can be decreased if a refueling rate lower than that of Zircaloy is adopted. During the same refueling period, the core with the most transparent sheath (SiC) operates without enrichment with a saving of 256 fresh bundles over a period of 300 FPD (see Table 5.5). The highest fuel economy is then observed in silicon-based system.

5.4.6 Loss of regulation control event

The overall CANDU safety takes advantage of its favorable inherent characteristics (e.g. small reactivity coefficients, small change in core global and local parameters, very long prompt neutron lifetime) and its two independent highly reliable shutdown systems (Ovanes *et al.*, 2011; Kastanya *et al.*, 2013). CANDU's defense-in-depth approach has been introduced by the Canadian Nuclear Safety Commission (CNSC) and “*One of the most important aspects of a defense-in-depth philosophy is the prevention of upset conditions and accidents which threaten the integrity of the fuel sheath and the primary coolant system pressure boundary*” (Hurst et Boyd, 1972). Reactivity insertion events are part of the design basis and are cited in the CNSC's latest requirement (RD-337) as: “*The maximum degree of positive reactivity and its maximum rate of increase by insertion in normal operations, AOO [anticipated operational occurrences], and DBAs [design basis accidents] so that no resultant failure of the reactor pressure boundary will occur, cooling capability will be maintained, and no significant damage will occur to the reactor core.*” (Canadian Nuclear Safety Commission, 2014). Here, a normal operation is assumed for one hour, when suddenly all RRS devices malfunction simultaneously in the same direction at their maximum speeds. The core behavior in the hours following the accident is presented in Fig. 5.17. $\rho(h)$ is the core dynamic reactivity and is computed every hour h as:

$$\rho(h) = \left[\frac{1}{k_{\text{eff,ref}}(h)} - \frac{1}{k_{\text{eff,per}}(h)} \right] \times 1000 \text{ [mk]}. \quad (5.3)$$

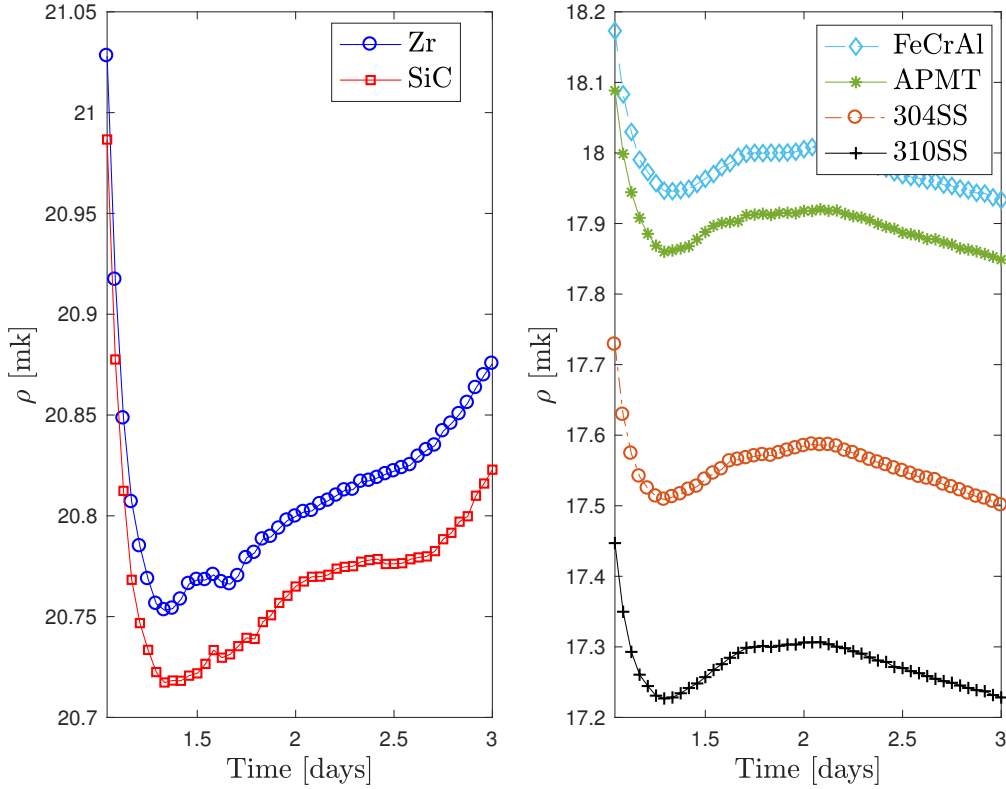


Figure 5.17 Reactivity evolution after a loss of regulation control event initiated on day 1.

with $k_{\text{eff,ref}}$ and $k_{\text{eff,per}}$ respectively the normal and the perturbed effective multiplication factor. The effect of ADJs and LZCs simultaneous loss is the same for all systems. Cores sheathed with Class I materials record the highest reactivity values. Zircaloy-II and SiC responses differ only by 0.04 mk along the entire transitional period. FeCrAl, APMT, 304SS and 310SS responses are, respectively, 2.8 mk, 2.9 mk, 3.2 mk and 3.5 mk lower than Zircaloy-II. 310SS response is lower than that of 304SS due to the fact that the first contains 11% more ^{59}Ni (Table 5.1) which has a thermal capture cross section of the order of 600 barns. APMT and FeCrAl have a very similar profile (0.08 mk of differences) due to their equivalent content in ^{56}Fe (Table 5.1) which has a thermal capture cross section of the order of 10 barns. The drop in reactivity observed in the first 7 hours is due to ^{135}Xe increase, resulting from the beta decay of ^{135}I (half-life of 6.585 hours). The same accident was simulated at 20 FPD. It was found that the reactivity of Class I systems increases monotonically during the transient due to the ^{239}Pu contribution, while that of Class II decreases constantly as a result of ^{235}U consumption. Two scenarios of return to the nominal conditions are thereafter simulated. In the first (Fig. 5.18, left), it is assumed that the event lasts 8 hours after which the plant operator manages to concurrently unlock all regulation mechanisms. In the second

(Fig. 5.18, *right*), we consider a gradual return to normal conditions after 6 hours of RRS devices loss; the operator succeeds, hourly, to fill only 5% of the 14 LZCs compartments and to insert only 5% of the 21 ADJs. We conclude that all the systems respond in a very similar way to the current CANDU-6 reactor, for the instantaneous or gradual recovery of the RRS devices.

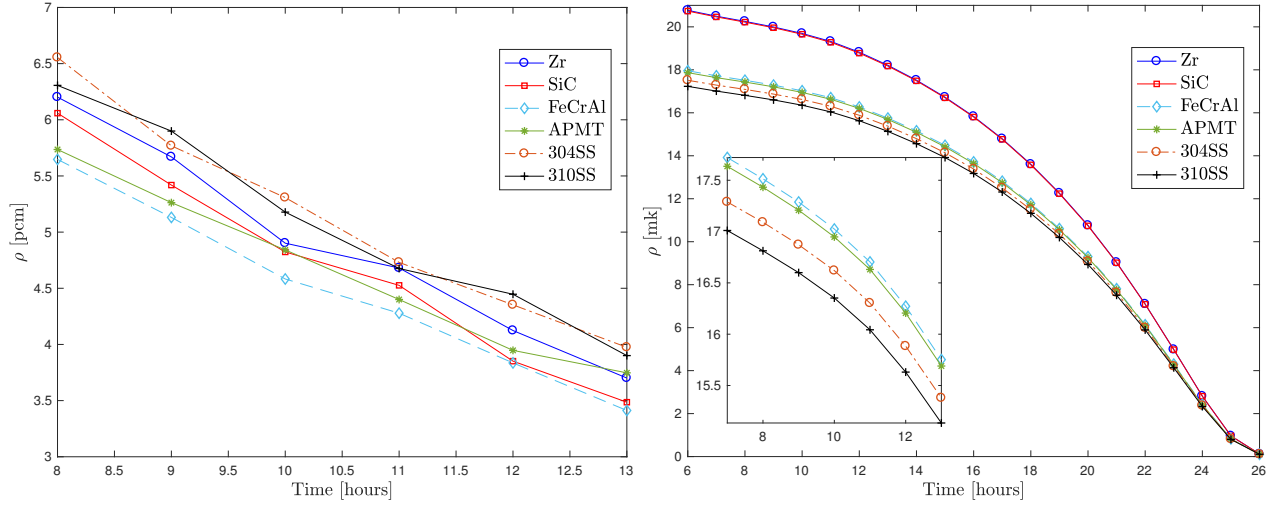


Figure 5.18 Reactivity evolution in the case of instantaneous recovery after 8 hours (*left*) and progressive recovery (*right*) of RRS devices.

5.4.7 Reactivity perturbations

Preventing unacceptable reactivity transients is the first fundamental safety objective in the IAEA (International Atomic Energy Agency) perspective (IAEA, 2000, 2005). On-power refueling ensures a stable equilibrium core over the life operation; core global and local parameters are constant with time (Garland, 2014) and both fuel and coolant neutronic properties show an overall axial symmetry (Kastanya *et al.*, 2013). This minimizes ADJ insertion and ejection maneuvers and leaves the LZC compartment fills in the desired operational range around 50% (Rouben, 2014). CANDU thermophysical properties cannot in any case result in a loss of a regulation event because all RRS and ESS devices pass through the moderator (which is maintained at a low temperature and quasi-atmospheric pressure) without penetrating the pressure tubes. Due to the large core size (7.6 m × 6 m), any device adverse movement will lead to a reactivity worth of 2.5 mk, far below the total delayed neutron contribution (5.5 mk). Due to the heavy water moderator and its mechanical separation from the fuel bundles, neutron lifetime is 30 to 45 times longer than that of typical PWRs (Kastanya *et al.*, 2013). This results in a longer reactor period, a lower flux sensitivity to

sudden reactivity perturbations and a higher degree of mitigation in reactivity initiated accidents (RIAs). It is not known yet how the CANDU-6 core would react to temperature and density perturbations when clad with the candidates' materials. Here, the core responses are compared when the following perturbation scenarios are separately examined:

- (a) coolant temperature (T_c) perturbations are progressively introduced by steps of ± 5 K (reference coolant temperature is 560.66 K).
- (b) moderator temperature (T_m) perturbations are progressively introduced by steps of ± 5 K (reference moderator temperature is 345.66 K).
- (c) fuel temperature (T_f) perturbations are progressively introduced by steps of ± 10 K (reference fuel temperature is 941.29 K).
- (d) void is progressively accumulated in the coolant volumetric mass density (ρ_v^c) by steps of 2.5% (reference coolant density is 0.8121 g/cm³).
- (e) void is progressively accumulated in the moderator volumetric mass density (ρ_v^m) by steps of 2.5% (reference moderator density is 1.0829 g/cm³).

At every time steps, the core dynamic reactivity is computed as shown in Eq. 5.3. Fuel is burned under CANDU nominal conditions. Perturbations are introduced uniformly in each cell and applied separately at each burnup steps.

5.4.7.1 Coolant temperature perturbations

Fig. 5.19 shows the cores' responses when the coolant temperature is perturbed. As T_c is increased, the neutron thermal equilibrium moves towards higher energies. As a result, the slope of the $\rho(T_c)$ curve is negative at BOC since the fuel then contains only ²³⁵U (no plutonium) which has a $1/\sqrt{E}$ fission cross section. For Zr and SiC cladding, the slope of the $\rho(T_c)$ curve is somewhat more negative than for Class II claddings. This is mainly due to a slightly faster neutron flux observed for the later claddings. At MOC, the slope of the $\rho(T_c)$ curve is positive due to the presence of ²³⁹Pu and ²⁴¹Pu that have large fission resonances at 0.295 eV. The fact that the slope of the $\rho(T_c)$ curve is somewhat more positive for Zr and SiC cladding is in this case a combination of two effects. A slightly faster neutron flux observed for the Class II claddings and a higher fuel enrichment (slightly larger negative contribution to reactivity from ²³⁵U when compared with the positive contribution from plutonium).

5.4.7.2 Moderator temperature perturbations

Fig. 5.20 shows that perturbing the moderator temperature results in the same global effect as the coolant temperature perturbation. The main difference is that reactivity values are

more than twice as large at BOC, while being 3.5 times higher at MOC. This behavior can be explained in a way similar to that presented in Section. 5.4.7.1, namely an increase in the temperature of the moderator displaces the thermal part of the neutron flux spectrum towards higher energies. As a result, thermal equilibrium with the higher temperature coolant is more easily reached leading to thermal fission in uranium being reduced at BOC while at MOC the presence of plutonium leads to an increase in reactivity. Because the ratio of moderator to coolant volume is 20.75, for the same perturbation ($\Delta T_m = \Delta T_c$), a higher effective neutron temperature is reached leading to a higher fraction of the equilibrium flux overlapping with the plutonium resonance (Whitlock, 1995). Class I and II maximum reactivity differences are below 1.2mk at BOC. At MOC, Zircaloy cladded fuels have respectively 2.72mk and 2.99mk higher reactivities than ferritic and steel-cladded cores while for SiC the difference with respect to Zircaloy cladded fuel stays below 0.08mk.

5.4.7.3 Fuel temperature perturbations

Fig. 5.21, *left*, shows that increasing the fuel temperature at BOC leads to negative reactivity feedback for both Class I and II-cladded systems. These responses are caused by the Doppler broadening of the low-lying s-wave resonances of ^{238}U . This effect is slightly less pronounced for Class II cladding because of the enriched fuel they contain (less ^{238}U means a larger resonance escape probability). Fig. 5.21, *right*, shows that increasing T_f at MOC implies a slow positive reactivity increase in Zircaloy and silicon systems, while a net negative reactivity decrease is observed in ferritic and steel systems. This behavior arises from two combined effects. The neutron spectrum is also slightly harder when T_f is increased. Fission also increases due to Doppler broadening of ^{239}Pu thermal resonance which gives a larger negative contribution to ρ than the reduction in resonance escape probability for Class I cladding. This effect is slightly reduced for the Class II claddings that contain enriched fuels (see Naceur et Marleau (2018) for plutonium inventories as a function of time for the different fuels considered here).

5.4.7.4 Coolant density perturbations

Analysis of coolant partial or complete voiding and its impact on neutron population is central to the design and the safety systems licensing for CANDU reactors. There is a strong incentive to reduce CANDU's positive reactivity response linking prompt power change and coolant loss (Whitlock, 1995; Talebi *et al.*, 2006; Farkas, 2014). Fig. 5.22 shows that a monotonic positive reactivity feedback is observed in all cores, with a slight upwards slope when the coolant voiding percentage increases. The fuel bundles are the main fast neutron sources, while the

bulk heavy water moderator is a well-thermalized neutron source. Contributing around 0.03% of the overall bundle absorption (Whitlock *et al.*, 1995), the major role of the hot coolant is to slow down fast and high energy epithermal neutrons, and increase the average energy of thermal neutrons. Whitlock (1995) showed that the loss of coolant simultaneously increases ^{238}U parasitic captures and all fissile isotopes fast fission. This spectral shift contributes +2mk in the equilibrium voided bundle. Assuming a very small coolant contribution to the moderating power ($\gamma\Sigma_s$), loss of coolant also decreases the epithermal flux in all resonances. As a consequence, the resonance escape probability given by

$$p \simeq \exp \left[-\frac{1}{\gamma\Sigma_s} \int \Sigma_c(E)\phi(E)dE \right]$$

with $\Sigma_c(E)$ being the resonant capture cross-section, decreases. This spectral shift contributes +10.9mk in the voiding effect at MOC. Reduction in coolant up-scattering shifts the thermal flux towards the moderator low equilibrium temperature. Both the thermal utilization factor f and thermal fission yield η increase for ^{235}U and decrease for plutonium. This effect is worth +5.1mk at zero burnup and close to zero at mid-burnup. This explains the lower void coefficient recorded at MOC (Fig. 5.22, *right*). At BOC, the higher coolant void reactivity (CVR) is found in Zicaloy and silicon systems (respectively 15.81mk and 15.52mk), followed by FeCrAl and APMT (13.96mk and 13.93mk) and finally 304SS and 310SS (13.62mk and 13.50mk). The lower ferritic and steel-cladded systems CVR magnitude are due to the cladding thermal and epithermal captures. A higher decrease in CVR with burnup is observed in Class I claddings because of their higher relative plutonium contents.

5.4.7.5 Moderator density perturbations

Fig. 5.23 shows that for all cores, a highly negative response to moderator voiding is observed. As the moderator void is increased, the thermalization process is less and less efficient and thermal fission is reduced. This effect is nearly independent of the cladding type.

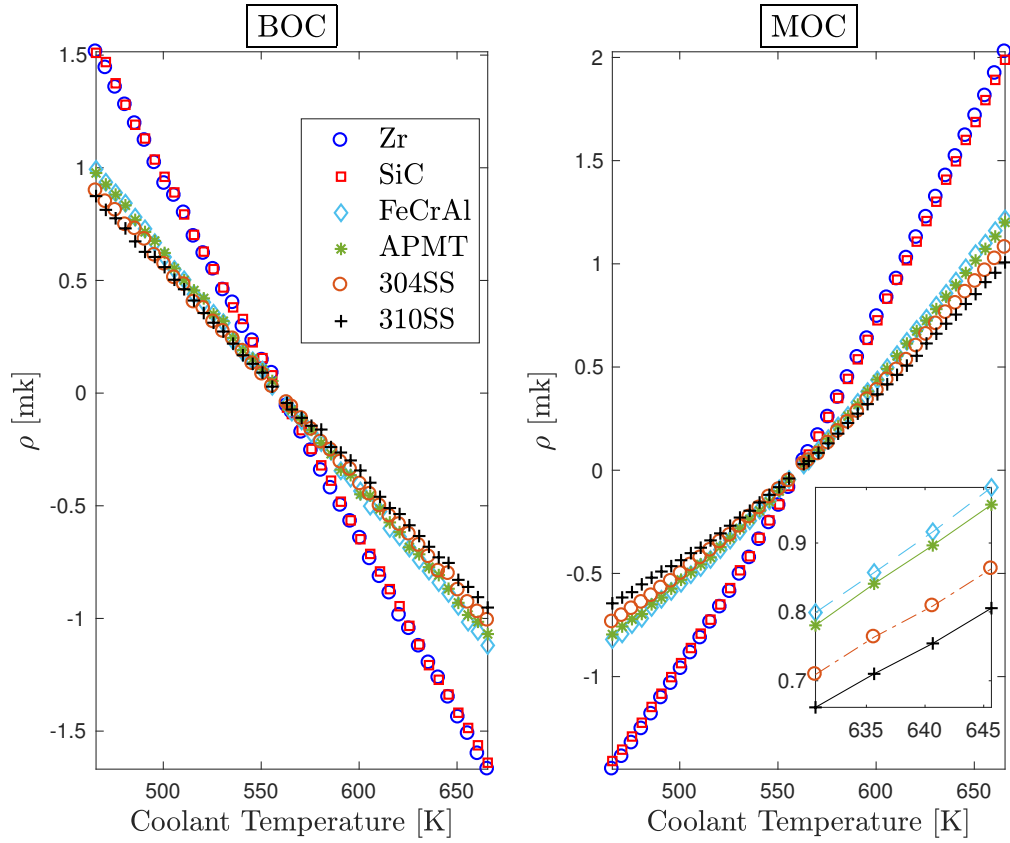


Figure 5.19 Coolant temperature perturbations.

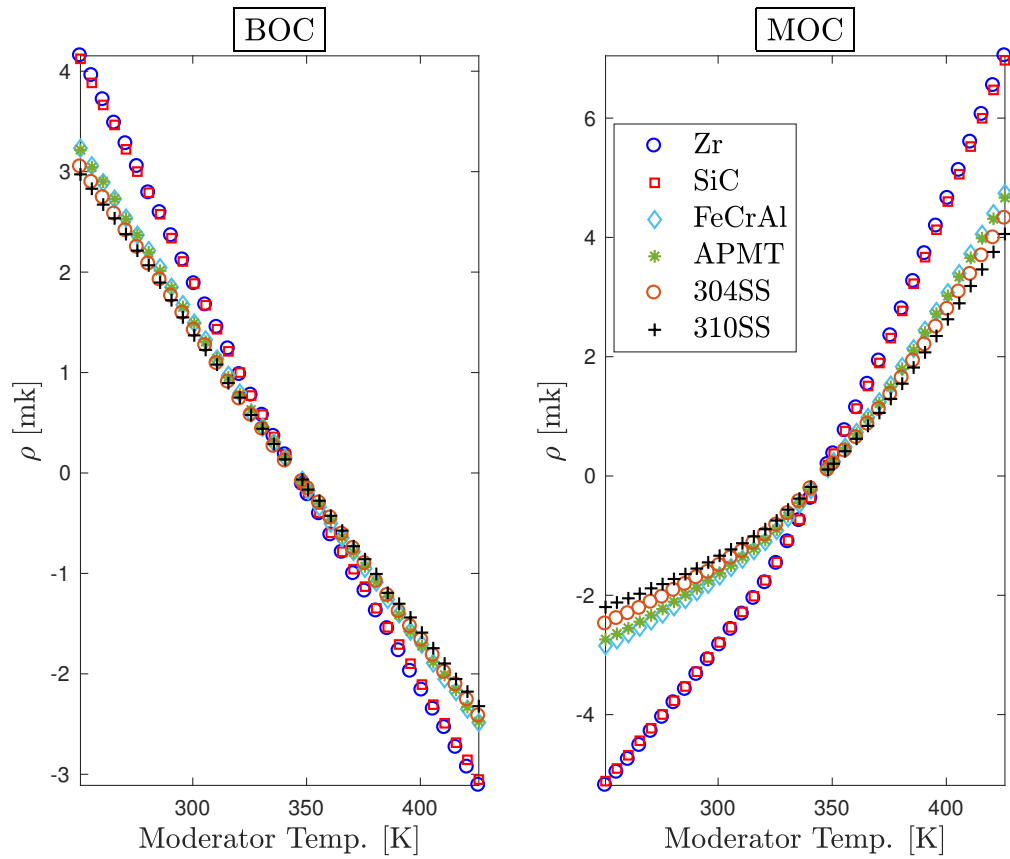


Figure 5.20 Moderator temperature perturbations.

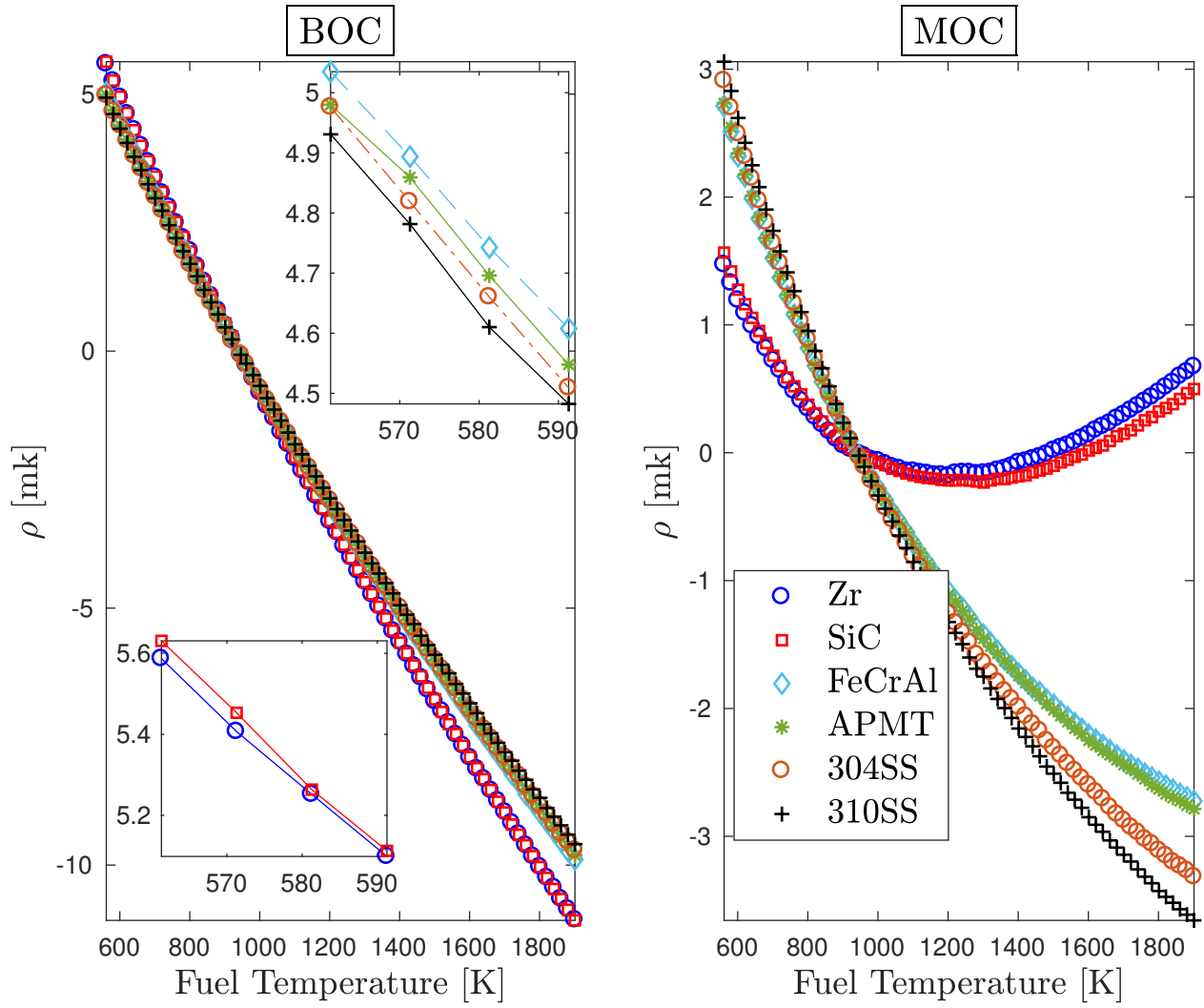


Figure 5.21 Fuel temperature perturbations.

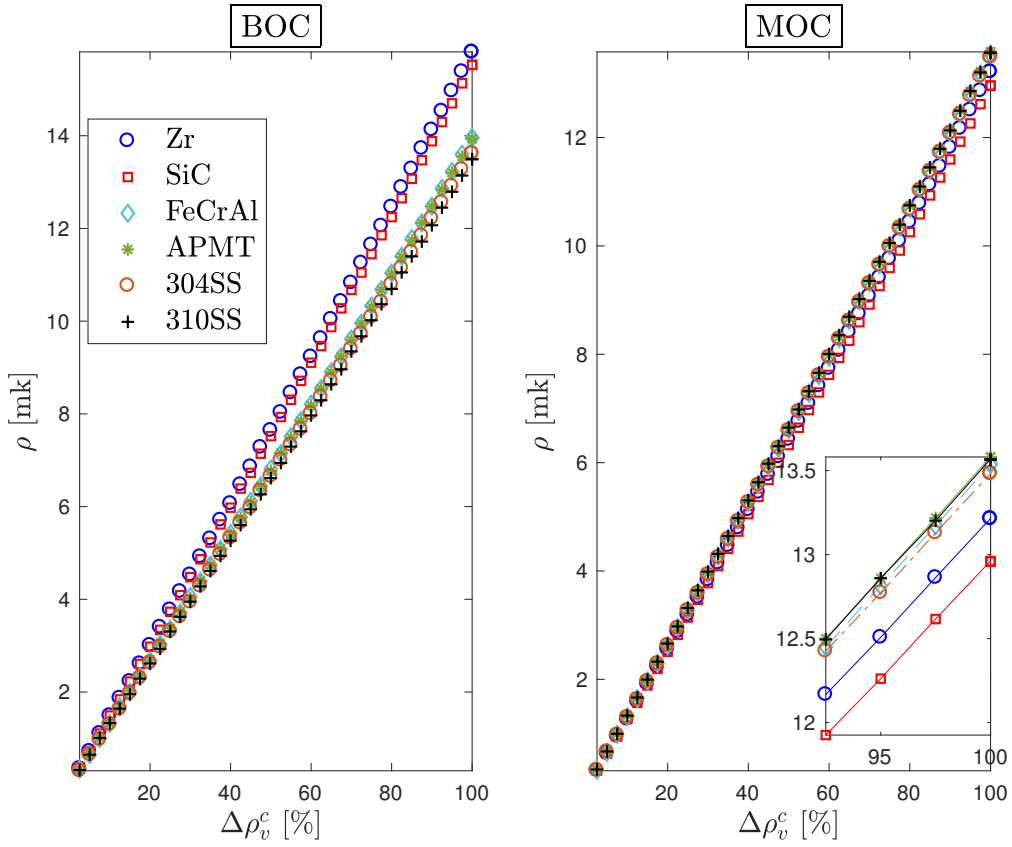


Figure 5.22 Coolant volumetric density perturbations.

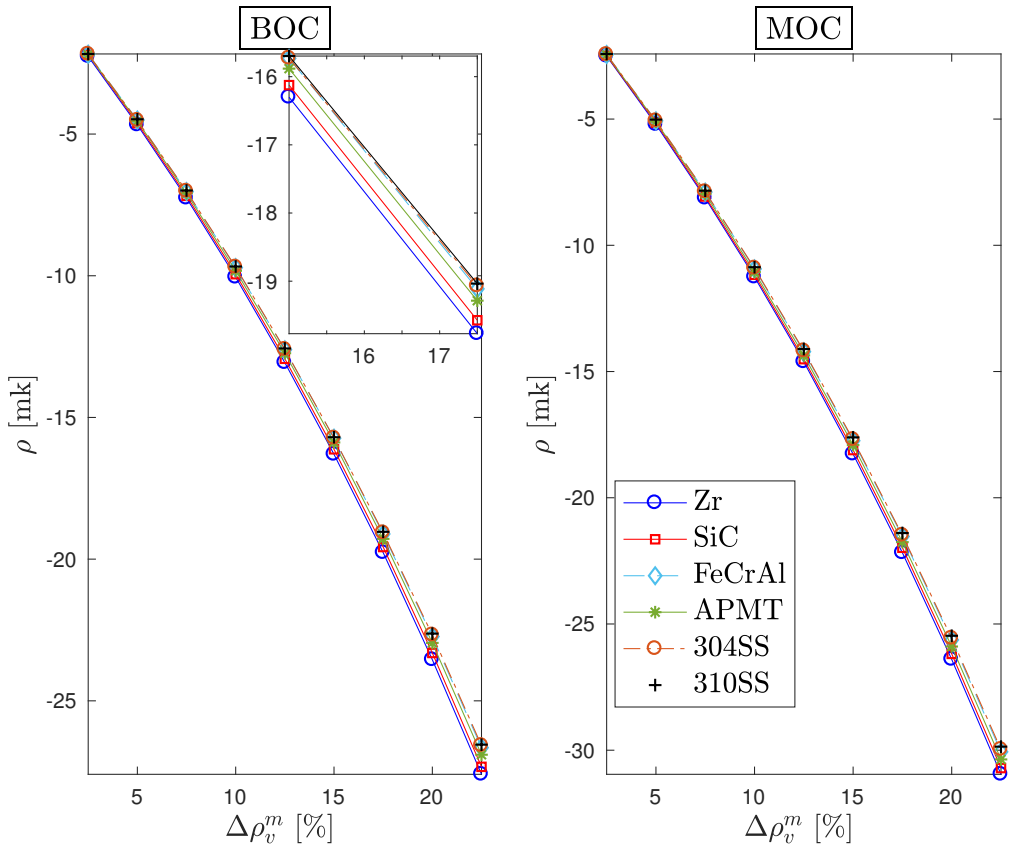


Figure 5.23 Moderator volumetric density perturbations.

5.5 Conclusion

The 2D and 3D DRAGON-DONJON capabilities are exploited to simulate CANDU-6 core operations with accident tolerant claddings under normal and accidental conditions. Core follow-up simulations to 300 full-power days (FPD) of operation are carried out using a 37-element bundle clad with iron-based alloys (FeCrAl and APMT), steel-based alloys (304SS and 310SS), silicon carbide (SiC) and Zircaloy (Zr-II). High thermal-to-epithermal ^{59}Ni and ^{56}Fe neutronic captures found in steel and iron-clad bundles are compensated using ^{235}U enrichment to reach the current CANDU-6 bundle cycle-averaged multiplication factor. A 25.1 mk higher core reactivity is observed in iron and steel systems at BOC. Iron and steel-based systems core reactivities dominate the CANDU reference value up to the 235th and 250th FPD, respectively. Enrichment eliminates ^{239}Pu peak in k_{eff} patterns, leading to a lower breeding ratio and a faster core reactivity decline. The most transparent SiC cladding permits CANDU operation with natural uranium, produces a 3.34 mk higher ^{239}Pu peak and a positive $\Delta\bar{k}_{\text{eff}}$ from Zircaloy-II during the complete operation cycle.

To compensate the fresh cores excess reactivity, several iterations were needed in DRAGON-DONJON calculations chain to reach a 0.01 mk convergence criterion. Only 0.1 ppm larger boron concentration from the actual CANDU-6 conditions is needed for the SiC system. The boron concentration increase is found 11 to 13 times higher in iron and steel systems, respectively. Analyzing the power and flux distributions, it is shown that the bundle and channel axial and radial profiles are similar to the expected CANDU's distributions. The channels and bundles with the highest and lowest powers are found exactly in the same locations for all cores. Also, the adjusters and the liquid-zone controllers flux flattening capabilities remain the same for all systems. All systems operations are found in compliance with CANDU operating license limits. A flux hardening is observed in every bundle-clad with steel or iron alloys. Despite the higher enrichment, 310SS, 304SS, APMT and FeCrAl systems, show, respectively, 19.81%, 18.31%, 16.52% and 16.06% lower thermal flux than the CANDU reference system. SiC and Zircaloy flux differences are below 0.3%. The flux hardening effect results in a 245.8 kW lower channel power in steel and ferritic-based systems. For steel based claddings, the time-averaged maximum channel and bundle power penalties from-Zircaloy are respectively around 106.4 kW and 22.6 kW. Zircaloy maximum channel power exceeds the silicon system only by 1.45 kW. To compensate the fuel burnup, an 8-bundle shift on-power refueling scheme based on the CANDU channel age model is tested. SiC, (FeCrAl, APMT, 304SS) and 310SS-clad systems' refueling operations start, respectively, 8, 10 and 12 days after the CANDU-6 scheduled refueling date. An equilibrium core state is reached in all systems. Silicon, iron and steel-based cores continue respectively to operate with 5 mk,

10 mk and 11 mk excess in reactivity compared to Zircaloy system. The highest fuel economy is observed in silicon system with a saving of 256 fresh bundles, compared to Zircaloy-II, over a period of 300 FPD.

A complete loss of regulation control event was also simulated. Zr and SiC responses differ only by 0.04 mk. Iron and steel-cladded systems' responses are, respectively, 2.8 mk and 3.5 mk lower than the current CANDU response. All systems respond in a similar way to the instantaneous or gradual recovery of reactor regulating devices. By uniformly perturbing the core global and local parameters, moderate and severe DB accident scenarios are simulated. Due to $^{239,241}\text{Pu}$ absence at BOC, the coolant and the moderator temperature coefficients are respectively 1.0 mk and 2.72 mk lower in iron and steel systems. At MOC, the Doppler effect is found negative in enriched cores, while positive in Zircaloy and silicon systems. The CVR magnitude is reduced by 1.88 mk and 2.31 mk in ferritic and steel systems, respectively.

Based on this methodology, we will next quantify the neutronic advantages and penalties when chromia, alumina and silica materials are used in a CANFLEX[®] bundle and as structural components in the Canadian-SCWR (supercritical water reactor). For CANDU, particular focus should now be placed on experimental and prototypical testing environments for these materials.

Acknowledgments

The authors acknowledge the Natural Sciences and Engineering Research of Canada (NSERC) for partly funding this work. One of the authors (AN) wishes to thank Yasamin Majedi for her valuable help in grammar and speller checking.

CHAPITRE 6 DISCUSSION GÉNÉRALE

Dans ce chapitre, quelques détails supplémentaires se rapportant aux choix de certains critères sont présentés. Certains résultats, n’ayant pas pu être ajoutés au contenu des deux articles, pour des raisons de restriction du contexte et de concision, sont brièvement commentés ici et présentés en *Annexe*.

6.1 La stratégie d’enrichissement

Il importe de rappeler qu’un enrichissement en ^{235}U s’est avéré nécessaire pour les crayons de combustible qui maintenaient un état sous-critique au long de tout le cycle d’opération. Une stratégie d’enrichissement pour un même facteur de multiplication effectif moyen (\bar{k}_{eff}) que celui du Zircaloy-II ($\bar{k}_{\text{eff,Zr}}$) a été alors choisie. L’intégrale de l’Éq. 4.1 est évaluée numériquement en ayant recours à la méthode des trapèzes, avec un choix de 16 points de burnup pour un critère de convergence de 10^{-2} pcm. Désignons par \mathcal{S}^{ref} cette stratégie. Au moins, trois autres stratégies ont été étudiées et analysées avec le même critère de convergence. Pour la stratégie \mathcal{S}^1 (Fig. B.1), l’enrichissement est augmenté au niveau des crayons jusqu’à ce que la réactivité de la grappe neuve coïncide avec celle du Zircaloy ($k_{\text{eff,Zr}}(t_0)$). Pour la stratégie \mathcal{S}^2 (Fig. B.2), l’enrichissement est augmenté de sorte que la réactivité de la grappe soit la même que celle du Zircaloy un jour avant son basculement¹ à l’état sous-critique ($k_{\text{eff,Zr}}(t_p - 1)$). Pour la stratégie \mathcal{S}^3 (Fig. B.3), l’enrichissement est augmenté au niveau des crayons jusqu’à ce que la réactivité de la grappe au EOC² soit la même que celle du Zircaloy ($k_{\text{eff,Zr}}(t_f)$). Le Tableau 6.1 présente pour chaque stratégie les niveaux d’enrichissement requis. La première

Tableau 6.1 Niveau d’enrichissement de la grappe en ^{235}U pour 4 stratégies étudiées.

	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
$e_{\text{UO}_2}(\mathcal{S}^{\text{ref}})$ [%]	0.711400	0.711400	1.049840	1.132900	1.192371	1.061905
$e_{\text{UO}_2}(\mathcal{S}^1)$ [%]	0.711400	0.711400	0.992901	1.067096	1.121361	1.002988
$e_{\text{UO}_2}(\mathcal{S}^2)$ [%]	0.711400	0.711400	1.063630	1.147522	1.207136	1.075977
$e_{\text{UO}_2}(\mathcal{S}^3)$ [%]	0.711400	0.711400	1.101569	1.188057	1.248593	1.114654

stratégie a dû être abandonnée car le régime sous-critique se voit établi au moins 50 jours

1. Cette variable a été définie à la Section 5.4.5 du chapitre 5, lors de l’étude du rechargement du cœur. Dans le même sens, cette variable t_p (désignant “turn point day”) est ré-utilisée pour la grappe.

2. Pour des raisons de consistance, la variable t_f est utilisée pour indiquer le 300^{ème} jour, qui correspond à la fin du cycle (EOC).

dans les grappes enrichies (Fig. B.1) avant qu’il ne soit observé pour le Zircaloy-II. Ceci va à l’encontre de la contrainte économique (Section 1.6.1), i.e. nécessite un enrichissement tout en entraînant une fréquence de rechargement plus élevée. Les stratégies \mathcal{S}^2 et \mathcal{S}^3 ont dû aussi être abandonnées pour quatre raisons (i) les valeurs élevées d’enrichissement se traduisent par des coûts exorbitants ($\sim 50.41 \$\text{CA/g} - \text{U}^{235}$ en 2015), (ii) le peu de sens physique de ce que représente une même réactivité au 300^{ème} (ou au 200^{ème}) jour lors du passage d’un calcul de transport à un calcul de diffusion, (iii) le rechargement du canal est prévu 164 jours avant le EOC et (iv) un pourcentage élevé en ^{235}U (un minimum de +60% comparé à SiC et Zr-II) est laissé dans la grappe lors de son déchargement du canal. Maintenant, une question se pose : Pourquoi les valeurs d’enrichissement les plus élevées sont celles observées pour \mathcal{S}^3 (même réactivité au EOC), suivies de \mathcal{S}^2 (même réactivité au jour de basculement), \mathcal{S}^{ref} (même réactivité moyenne) et finalement celles observées pour \mathcal{S}^1 (même réactivité au BOC) ? Rappelons que lors des calculs de transport et de diffusion, on a remarqué que l’enrichissement fait disparaître le pic en ^{239}Pu , diminuant le pourcentage des captures fertiles en ^{238}U au dépens des absorptions fissiles en ^{235}U , chose qui résulte en un facteur de conversion plus faible. L’étude de ces stratégies montre que l’augmentation de l’enrichissement des crayons de combustible en ^{235}U permet de diminuer davantage le taux de décroissance du k_{eff} (dk_{eff}/dt). En d’autres mots, une balance au burnup plus efficace se traduit par un taux de décroissance du k_{eff} plus faible et ainsi un enrichissement plus élevé. En prenant à titre d’exemple la grappe gainée avec l’alliage FeCrAl, et en comparant les taux de décroissances par rapport à celui observé pour \mathcal{S}^1 (stratégie ayant nécessité le moins d’enrichissement), on voit que ces taux sont réduits de 1.73%, 2.14% et 3.28%, lorsque les stratégies \mathcal{S}^{ref} , \mathcal{S}^2 et \mathcal{S}^3 sont adoptées. Ces taux reflètent exactement les coûts en enrichissement d’une stratégie à une autre (Tableau 6.1).

6.2 Raffinement des conditions de discrétisation

Lors du calcul des probabilités de collisions, toutes les pastilles ont été entièrement couvertes par une discrétisation d’ordre 2 (SPLITR 2). Lors de l’évolution du combustible, seulement un mélange (1 MIX) par anneau concentrique de crayons de combustible a été défini, donnant un total de 4 mélanges de combustibles différents pour toute la grappe (Tableau C.1). On suggère de raffiner davantage les conditions de discrétisation géométrique (et ainsi la précision du “*tracking*”) et de considérer l’inhomogénéité du combustible, en définissant plusieurs mélanges différents par pastille et en permettant ainsi différents taux de combustion possibles pour un seul crayon. Les Tableaux C.2 à C.9 montrent, pour les 16 points de burnup, les nouveaux facteurs de multiplication et les comparent avec le cas de référence (en présentant

les différences dans le k_{eff} en [pcm]). On s'attend à ce que le meilleur raffinement serait apporté en considérant la discrétisation la plus fine (SPLITR 10) avec le plus grand nombre de mélanges par pastille (4 MIX). Les différences maximales au niveau du k_{eff} (par rapport au cas de référence) sont de l'ordre de 2.9 pcm pour SiC, 9.6 pcm pour les grappes ferritiques et 11.1 pcm pour l'acier inoxydable (Tableau C.9). On assume alors que cette amélioration au niveau du calcul de transport a peu de poids sur notre étude.

6.3 Durcissement du flux neutronique

Il a été remarqué (Section 4.4.2) que les pics des flux rapides sont superposés pour tous les combustibles étudiés, alors que les pics thermiques sont réduits pour FeCrAl, APMT, 304SS et 310SS (Fig. 4.8). Ce durcissement spectral est à l'origine d'une réduction des puissances de grappe et de canal dans les points les plus chauds du cœur du réacteur (Figs. 5.11 et 5.12). Les Figs. D.2 et D.3 montrent le flux neutronique par unité de léthargie au niveau du combustible au début et à la fin du cycle, alors que la Fig. D.4 illustre le degré de durcissement spectral pour une homogénéisation faite au niveau de la gaine et du modérateur. Ces illustrations permettent de confirmer que le durcissement est omniprésent en toute région étudiée, et ce à chaque pas de burnup. Ce qui diffère c'est le degré de durcissement vis-à-vis de (i) la période du cycle et (ii) de la région étudiée. Prenons comme exemple le cas FeCrAl, à 0.025 eV, et

Tableau 6.2 Durcissement du flux neutronique en [%] par rapport au Zircaloy-II à 0.025 eV.

	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
Comb. (UO ₂) : 1 ^{er} jour	-0.29	+33.16	+38.45	+41.79	+33.95
Comb. (UO ₂) : 150 ^{ème} jour	-0.17	+25.48	+30.34	+33.53	+26.14
Comb. (UO ₂) : 300 ^{ème} jour	-0.13	+21.66	+26.20	+29.25	+22.24
Modé. (D ₂ O) : 1 ^{er} jour	-0.20	+16.36	+18.97	+20.78	+16.86
Modé. (D ₂ O) : 150 ^{ème} jour	-0.12	+10.79	+12.85	+14.39	+11.19
Modé. (D ₂ O) : 300 ^{ème} jour	-0.09	+8.91	+10.77	+12.20	+9.26

comparons l'écart du flux par rapport au Zircaloy-II (Tableau 6.2) ; le degré de durcissement au niveau du combustible passe de 33.2% au 1^{er} jour, à 25.5% et 21.7%, respectivement, au 150^{ème} et au 300^{ème} jour. Pour comprendre ce comportement, regardons le changement au niveau du flux pour la même énergie entre le 1^{er} et le 300^{ème} jour pour les deux mêmes gaines utilisées pour quantifier le niveau du durcissement. À 0.025 eV, on trouve que le flux est réduit de 15.8% pour le Zircaloy durant un cycle complet, alors qu'il n'est réduit que de 1.3% pour FeCrAl pour une même durée du cycle. La réduction du durcissement au cours du cycle est alors expliquée par la nature de l'environnement enrichi et sa capacité à balancer l'effet de

l'évolution des isotopes fissiles sur le spectre neutronique. Cette réduction du durcissement en fonction du burnup est présente dans toutes les régions étudiées. Continuons d'analyser le cas typique FeCrAl, pour une incidence neutronique à 0.025 eV, le durcissement au 1^{er} jour est de 16.4% au niveau du modérateur, de 32.6% au niveau de la gaine et de 33.2% au niveau du combustible. Pour expliquer cette différence, rappelons que la fission est à l'origine du flux rapide, alors que le modérateur est à l'origine du flux thermique. Le rôle du caloporteur est la création d'un flux épithermique. Cela dit qu'après la fin du processus de thermalisation, les neutrons doivent traverser les gaines pour engendrer d'autres fissions. Leurs pénalités thermiques expliquent le durcissement prononcé au niveau des crayons. Or, ces mêmes gaines montrent aussi des captures (n,γ) moins prononcées dans la zone épithermique (Fig. 4.2), ce qui pourrait expliquer un durcissement deux fois moins élevé dans le flux rejoignant le modérateur.

Les mêmes effets discutés sont reflétés par le profil radial de la densité de puissance totale déposée au niveau de la pastille (Figs. E.1 à E.3). Le niveau de durcissement dicte quel crayon génère la densité la plus élevée. L'enrichissement fait en sorte que la réduction de la densité de puissance, entre le 1^{er} et le 300^{ème} jour, à l'extrémité de la pastille n'est que de 2.4% pour 310SS et 4.1% pour FeCrAl, contre 7.8% pour le Zircaloy.

6.4 Taux de production neutronique

Les Figs. E.4 à E.6 montrent le profil radial du taux de production de neutrons au sein de la pastille pour les groupes³ thermiques, épithermiques et rapides, à différentes périodes du cycle. L'écart dans les régions externes de la pastille pour le groupe thermique (discuté à la Section 4.4.3) est aussi visible à tout point de burnup (Figs. E.4 et E.5). Cette écart est totalement inversé pour le groupe épithermique (Fig. E.6), i.e. FeCrAl, APMT, 304SS et 310SS montrent un taux de production de neutrons épithermiques plus élevé que SiC et Zr-II. Pour comprendre ce phénomène, il faut décortiquer les deux facteurs composant le taux de production neutronique (Tableau 6.3). En prenant à titre d'illustration le cas FeCrAl, on trouve alors que le taux de fission ($\nu\Sigma_f$) reste 1.4 fois plus élevé dans cet alliage que dans le Zircaloy. En comparant les flux intégrés (ϕ_{int}) au 1^{er} jour, on remarque que le durcissement passe de 36.7% dans la zone thermique à seulement 2.8% dans la zone épithermique. Autrement dit, lorsque le durcissement est réduit (dû à une probabilité de capture moins élevée dans la zone épithermique), le poids de l'enrichissement est mieux “*senti*” sur le taux de fission et la génération de puissance, quoique le rendement global (somme de ces trois condensations

3. Les limites des groupes vont comme suit : pour la condensation rapide [9.119 keV, 19.640 MeV], pour la condensation épithermique [0.625 eV, 9.119 keV] et pour la condensation thermique [$1.00 \cdot 10^{-5}$ eV, 0.625 eV].

d'énergie) reste meilleur pour SiC et Zircaloy. Le comportement analogue observé pour le groupe rapide s'explique par un taux de fission ($\nu\Sigma_f$) égal et une superposition des pics rapides des différents combustibles étudiés.

Tableau 6.3 Ratios des taux de fission et durcissement du flux par rapport au Zircaloy, au 1^{er} jour, à l'extrémité de la pastille pour une condensation à trois groupes d'énergie.

	SiC	FeCrAl	304SS	310SS	APMT
$\nu\Sigma_f/\nu\Sigma_{f-Zr}$ (Therm.)	0.9997	1.41	1.50	1.57	1.42
$\nu\Sigma_f/\nu\Sigma_{f-Zr}$ (Épith.)	0.9989	1.44	1.55	1.62	1.45
$\nu\Sigma_f/\nu\Sigma_{f-Zr}$ (Rapid.)	1.0122	1.01	1.01	1.01	1.01
$\Delta\phi_{\text{int}}$ [%] (Therm.)	-0.50	+36.71	+42.70	+46.34	+37.52
$\Delta\phi_{\text{int}}$ [%] (Épith.)	-0.45	+2.84	+3.78	+4.29	+3.30
$\Delta\phi_{\text{int}}$ [%] (Rapid.)	+0.29	+2.40	+2.94	+3.26	+2.41

CHAPITRE 7 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS

Une année précédant le début de ce projet de recherche et quatre années suivant l'accident de Fukushima-Daiichi (11 Mars, 2011), les résultats aux laboratoires d'Oak Ridge ont confirmé que le problème d'oxydation autocatalysée¹ du zirconium peut être contourné, au sein du crayon du combustible, en adoptant une gaine d'une gamme de trois classes de couches oxydes protectrices, à savoir l'alumine (Al_2O_3), la chromine (Cr_2O_3) et la silice (SiO_2). Montrant un changement de masse 100 fois au-dessous de celui de la gaine au Zircaloy à haute pression et température et une réduction du coefficient d'oxydation parabolique d'un facteur de 10^4 , l'acier inoxydable austénitique (316SS), les matériaux ferritiques (FeCrAl et APMT) et le silicium carbone (SiC) sont quatre candidats potentiels susceptibles de remplacer le Zircaloy qu'a adopté l'industrie nucléaire, tant civile que militaire, depuis 1946. De ce fait, le concept de "*combustible tolérant aux accidents*", évoqué par le Comité Sénatorial du Congrès des États-Unis en Septembre 2011, fût physiquement défini comme étant un matériau pouvant, en cas de perte totale du caloporteur, offrir à l'opérateur une marge temporelle supplémentaire² avant que la fusion du cœur ne s'amorce, tout en améliorant ou en maintenant les rendements neutroniques et thermiques en conditions nominales d'opération.

Ce projet de recherche naît après un constat de déploiement d'un effort assidu américain, français et japonais en vue d'une adoption d'un crayon tolérant aux accidents dans les assemblages des réacteurs à eau légère par la fin de l'année 2022, conformément à un premier rapport dressé par la branche nucléaire du Département d'Énergie des États-Unis. Les premières intentions des laboratoires nucléaires canadiens d'initier des programmes similaires nous ont incités à utiliser notre expertise en calcul neutronique en vue de quantifier l'impact, en conditions normales et BDA, d'un éventuel remplacement du gainage au Zircaloy dans la filière CANDU-6 des réacteurs à eau lourde.

7.1 Synthèse des travaux

Les captures neutroniques radiatives de ^{56}Fe (~ 10 barns), dans les alliages ferritiques, et de ^{59}Ni (~ 600 barns), dans l'alliage métallique austénitique, ont impliqué une impasse dans le maintien de la réaction en chaîne sous une condition d'enrichissement naturel avec la même géométrie du crayon CANDU actuel. Un critère d'enrichissement en ^{235}U est alors

1. Ce problème couple une escalade de l'exothermicité réactionnelle à 1204.45°C (génération de dihydrogène à capacité explosive) à une forte perméabilité au transport d'oxygène (dégradation du réseau métallique $\alpha\text{-}^{91}\text{Zr}$).

2. Il s'agit d'une marge allant de quelques minutes à quelques dizaines d'heures.

développé pour contrebalancer ces pénalités. Les besoins en enrichissement sont quantifiés, à 1.04 – 1.06% pour les candidats ferritiques contre 1.19% pour l’austénitique, de sorte que le \bar{k}_{eff} , moyenné sur un cycle complet (i.e. 300 jours d’opérations), soit le même que celui de la grappe standard (actuelle) à 37 crayons. La haute transparence observée pour le silicium carbone est expliquée par la structure nucléaire doublement semi-magique de l’isotope $^{28}_{14}\text{Si}$. Il en découle que les conditions de grappe (enrichissement et géométrie du crayon) peuvent être préservées avec un maintien d’un minimum de 3.4 mk de sur-criticité moyenne ($\bar{\Delta k}_{\text{eff}}$), par rapport au Zircaloy-II, tout au long du cycle d’opération. Lorsqu’un enrichissement est introduit, les calculs de transport et de diffusion montrent une disparition du pic ^{239}Pu (observé aux alentours du 35^{ème} jour), un facteur de conversion en isotopes fertiles moins élevé et ainsi un plus grand taux de décroissance du k_{eff} . Lorsque comparé aux conditions d’empoisonnement actuelles, il est observé qu’une augmentation de 0.1 ppm dans la concentration du bore est nécessaire pour SiC pour contrer l’excès de réactivité au début du cycle. Cette augmentation est de 11 à 13 fois supérieures pour les systèmes ferritiques et austénitique. À chaque pas de temps, que ce soit dans la pastille, la gaine ou le modérateur, un calcul de transport à 172 groupes d’énergie montre un durcissement du flux thermique pour FeCrAl, APMT et 310SS. À 0.025 eV, la valeur minimale du durcissement au 1^{er} jour est de 33.2% et de 16.4%, respectivement, aux niveaux des crayons de combustible et du modérateur. La capacité du milieu enrichi à contrer l’effet de l’évolution réduit ces deux écarts, respectivement, à 21.7% et 8.9% au 300^{ème} jour. Ce durcissement induit une moyenne de 50% de plus de ^{135}Xe , 60% de plus d’ ^{235}U et un contenu équivalent en ^{239}Pu lors du déchargement des grappes gainées par les alliages ferritiques et austénitique. Faisant une moyenne sur un cycle complet, les taux d’absorptions thermiques sont 203 fois plus élevés dans la pastille UO_2 que dans la gaine SiC, contre une réduction de ce ratio à 8.1, 8.0 et 6.2, respectivement, pour les systèmes FeCrAl, APMT et 310SS. En subdivisant la pastille UO_2 en 20 anneaux concentriques, et en permettant différents taux de combustions à chacune de ces sous-régions, le même profil radial, soit un même degré d’autoprotection spatiale, a été observé pour le taux de production de neutrons par fission dû à des neutrons thermiques, épithermiques et rapides ($\nu \Sigma_f \phi_{\text{int}}$), la densité de puissance et la distribution de ^{239}Pu , que ce soit au début, à la moitié ou à la fin du cycle pour tout crayon étudié. Le durcissement du flux fait en sorte que, dans les régions externes de la pastille, le taux de fission par neutrons thermiques est 7.6% plus élevé pour SiC et Zr que pour les systèmes ferritiques et austénitique. L’effet de l’enrichissement diminue les chances des captures fertiles en ^{238}U en dépit d’absorptions fissiles en ^{235}U , ce qui fait que les concentrations en ^{239}Pu décroissent au moins de 7% à mi-cycle, aux extrémités de la pastille, et ce, dans les crayons gainés par FeCrAl, APMT et 310SS. La plus grande économie neutronique est observée pour la grappe gainée avec SiC. Par

ailleurs, il est démontré que les coûts en enrichissement et le durcissement du flux peuvent être réduits en optimisant la géométrie du crayon. Diminuer l'épaisseur des gaines ferritiques et austénitique de 200 μm par une augmentation du volume du combustible résulte en la meilleure amélioration du rendement neutronique (au moins 51.9 mk sur \bar{k}_{eff}), suivie de celle par une augmentation du volume du caloporteur (au moins 49.9 mk sur \bar{k}_{eff}) et finalement celle par une augmentation du volume du gap d'hélium (au moins 49.3 mk sur \bar{k}_{eff}).

En analysant la distribution radiale et axiale de la puissance dans le cœur du réacteur, il est observé que les canaux et les grappes avec les puissances les plus élevées et les plus faibles sont exactement aux mêmes positions que celles du CANDU-6 actuel. L'effet de l'insertion des barres de contrôle solides et liquides résulte en un même degré d'aplanissement du flux pour tous les cœurs étudiés. En analysant l'évolution des puissances maximales des grappes et des canaux, il est confirmé que toutes les opérations sont conformes aux limites fixées par la licence d'exploitation du CANDU-6. Le même durcissement de flux constaté pour la grappe enrichie en ^{235}U , lors d'un calcul multigroupes, est observé lors du calcul de diffusion dans les régions du cœur internes et externes, et ce, indépendamment du niveau du burnup. Au point le plus chaud, au 35^{ème} jour, le flux thermique, comparé au Zircaloy, se trouve réduit de 19.8%, 16.5% et 16.1% dans les systèmes 310SS, APMT et FeCrAl, alors que la différence n'est que de 0.26% lorsqu'il s'agit de SiC. Bien que l'excès en réactivité soit plus important dans les systèmes enrichis, ce durcissement de flux peut engendrer des réductions au niveau de la puissance du canal de l'ordre de 245.8 kW et des réductions au niveau de la puissance de la grappe de l'ordre de 53.8 kW. Les différences au niveau des puissances maximales de grappe et de canal, entre Zr et SiC, ne sont que de 0.3 kW et 1.5 kW, respectivement. En adoptant un schéma de rechargement continu à 8 grappes, basé sur le modèle d'âge du canal, deux périodes transitoires suivie d'une phase finale d'équilibre ont pu être observées pour tout système à l'étude. Dû à leur réserve en excès de réactivité (que ce soit pour des raisons d'enrichissement ou de transparence neutronique), le rechargement des cœurs gainés avec SiC, (FeCrAl, APMT) et 310SS débutent, respectivement, 8, 10 et 12 jours après la date prévue pour le rechargement du CANDU-6 actuel. Seulement 1% d'enrichissement fût nécessaire pour raccourcir la première transitoire de plus d'un mois à moins d'une semaine. Une phase d'équilibre, pendant laquelle tous les paramètres globaux du cœur sont essentiellement stationnaires, est atteinte avec un excès supplémentaire de 5 mk, 10 mk et 11 mk, respectivement, pour le silicium-carbone, les systèmes ferritiques et austénitique. Il a été retenu qu'une économie de 256 grappes UOX sur une période de 300 jours d'opération est possible pour le cœur gainé avec le silicium-carbone. L'économie du rechargement des cœurs ferritiques et austénitique peut être améliorée si des fréquences de rechargement inférieures à celle du Zircaloy sont adoptées. Une perte totale du système de régulation du

réacteur a été simulée au 1^{er} et au 20^{ème} jour d'opération et un suivi de l'état du cœur a été présenté à chaque heure sur une période de 3 jours. SiC adopte un comportement semblable au Zircaloy, alors que les réponses des systèmes ferritiques et austénitiques sont au moins de 2.8 mk et de 3.5 mk au-dessous du Zircaloy. Tous les cœurs étudiés répondent d'une manière équivalente quant à une récupération instantanée ou progressive du système de régulation. En perturbant les paramètres globaux du cœur et locaux des grappes, des scénarios DBA, tant sévères que modérés, ont pu être examinés à chaque pas de burnup. Dû à leurs faibles contenus en $^{239,241}\text{Pu}$, les systèmes ferritiques et austénitiques montrent, à mi-cycle, des coefficients de température du caloporteur et du modérateur, respectivement, de 1.0 mk et de 2.72 mk au-dessous des réponses du Zircaloy et du SiC. L'effet de l'enrichissement, par sa réduction des proportions en ^{238}U , augmente les probabilités de fuite en résonance et résulte en un effet Doppler moins prononcé pour les systèmes ferritiques et austénitiques au début du cycle. Le contenu en $^{239,241}\text{Pu}$ inverse ce comportement dès son accumulation ; e.g. à mi-cycle, le coefficient de température du combustible est positif pour Zr et SiC, alors que négatif pour FeCrAl, APMT et 310SS. Les pénalités neutroniques dans les systèmes ferritiques et austénitiques permettent une réduction respective de 1.88 mk et de 2.31 mk dans le coefficient du vide du caloporteur.

7.2 Limitations de la solution proposée et améliorations futures

La *morphologie de la couche oxyde* constitue la première limitation quant à l'adoption de ces matériaux dans le crayon du combustible. Nous nous limitons à rappeler que l'adoption des solutions ferritiques et austénitiques se trouve confrontée à (i) un changement de la politique de l'industrie nucléaire canadienne vers une nécessité d'enrichissement, (ii) une perméabilité de la gaine au transport du tritium et une contamination du circuit primaire, (iii) une incompréhension phénoménologique en ce qui concerne l'oxydation rapide de la couche alumine au-delà de 1500 °C et (iv) la dégradation de la couche chromine par une volatilisation du ^{52}Cr . Nous rappelons également que l'adoption du silicium-carbone se trouve confrontée à (i) une détérioration de la matrice métallique par une dissipation de ^{12}C au moment de l'oxydation, (ii) une volatilisation du silicium oxydant et (iii) une possibilité de transport des produits de fission vers le caloporteur à travers le champ de micro-fissures de la silice à basses températures. Des revêtements en Cr, CrN et TiN sur la gaine SiC, introduits à 288 °C et 7.5 MPa, ont montré une protection complète du matériau face à la corrosion et une possibilité d'établissement de barrière face au transport radioactif. L'effet de ces revêtements sur la neutronique du cœur et les besoins en enrichissement n'a pas été investigué dans cette étude.

Les résultats de ce projet de recherche ne concernent que la performance neutronique du crayon, de la grappe et du cœur. Il est donc difficile d'imaginer qu'ils pourront impliquer une adoption définitive d'une gaine à l'égard d'une autre. Le *comportement thermo-mécanique du nouveau crayon CANDU* dans un environnement d'eau lourde, à faibles et hauts burnups, en *état stationnaire et transitoire* doit être élucidé pour compléter cette étude. Cela concerne l'étude des profils de température radiaux et axiaux, au centre du combustible, à sa surface externe, dans l'espace d'hélium, à la surface interne et externe de la gaine et au niveau du tube de force à différents burnups pour différentes conditions d'écoulement du caloporteur. Dans ces mêmes conditions, l'étude doit déterminer les nouvelles phases de déformation plastique et élastique de la gaine, les conditions de pression interne quand au relâchement des produits de fission, les capacités de transfert de chaleur vers le crayon et l'interaction mécanique pastille-gaine. Les routines MATPRO du code FRAPCON-3 (Geelhood *et al.*, 2011) ont dû être modifiées par Ott *et al.* (2014) pour étudier la performance de ces nouveaux crayons dans un environnement LWR en conditions stationnaires. Le recours au code MELCORE-1.8.5 (Gauntt *et al.*, 2005), avec une impossibilité de découpler le changement du Zircaloy de la gaine de celui du restant du cœur, a eu lieu pour simuler la performance du crayon LWR dans des conditions SBO et a fini par quantifier les marges en terme d'heures et de minutes gagnées dans des scénarios BDBAs (Ott *et al.*, 2014). Une étude thermo-hydraulique similaire devrait se faire pour tout crayon dont la candidature est maintenue dans un environnement CANDU.

Finalement, *certaines hypothèses, certains critères et choix de calculs* peuvent être raffinés davantage. Le critère de convergence pour le calcul de l'enrichissement a été atteint en ayant recours à 16 points de burnups et l'intégrale pour le \bar{k}_{eff} a été évaluée, numériquement, en faisant appel à la méthode des trapèzes. La méthode de Simpson peut réduire au moins de deux fois l'ordre de l'erreur liée à l'évaluation de l'intégrale. Aussi, l'augmentation du nombre des points de burnups améliore la précision de l'évaluation. L'impact du choix de la méthode d'autoprotection des résonances des noyaux lourds, entre la méthode Stamm'ler généralisée et la méthode des sous-groupes, n'a pas été investigué. Un calcul de thermo-hydraulique, en état stationnaire, devrait avoir lieu pour juger si les réductions de 200 μm au niveau des épaisseurs des gaines ferritiques et austénitiques sont justifiées et sécuritaires. Lors des études des scénarios DBs, des perturbations uniformes ont été introduites dans les paramètres locaux, à savoir la température du combustible, la température du caloporteur et la densité du caloporteur. Il est donc clair que les coefficients de réactivité sont sur-estimés. Une étude plus localisée, i.e. avec l'effet d'une vidange de certains canaux et des perturbations thermiques de certaines zones ciblées du cœur, pourront refléter des situations plus réelles et plus modérées.

RÉFÉRENCES

- Adamson, R. (2010). *Zirconium Production and Technology : The Kroll Medal Papers, 1975-2010*. ASTM manual series RPS2. ASTM International, West Conshohocken, PA, USA.
- Allison, C. *et al.* (1985). Capabilities of the integrated SCDAP/RELAP5/TRAP-MELT severe accident computer code, Proc. *IAEA Int. Symp. on Source Term Evaluation for Accident Conditions, October 28-November 1*. Columbus, OH, USA.
- Ambartsumyan, R., Kiselev, A., *et al.* (1959). Mechanical properties and corrosion resistance of zirconium and its alloys in water, steam and gases at elevated temperatures. Rapport technique, USSR/A/CONF.15/P/2044.
- Andresen, P., Rebak, R., Dolley, E., *et al.* (2014). SCC Resistance of Irradiated and Unirradiated High Cr Ferritic Steels. *Paper C2014-3760, Corrosion/2014, San Antonio, TX*, 09–13.
- Ang, C., Raiman, S., Burns, J., Hu, X., and Katoh, Y. (2017). Evaluation of the First Generation Dual-purpose Coatings for SiC Cladding. Rapport technique, ORNL, SR-2018/318.
- Antill, J. and Warburton, J. (1971). Active to passive transition in the oxidation of SiC. *Corrosion Science*, 11(6), 337–342.
- Aronson, S., Roof, R., and Belle, J. (1957). Kinetic study of the oxidation of uranium dioxide. *The Journal of Chemical Physics*, 27(1), 137–144.
- Asteman, H., Svensson, J.-E., and Johansson, L.-G. (2002). Oxidation of 310 steel in H₂O/O₂ mixtures at 600 C : the effect of water-vapour-enhanced chromium evaporation. *Corrosion Science*, 44(11), 2635–2649.
- Asteman, H., Svensson, J.-E., Johansson, L.-G., and Norell, M. (1999). Indication of chromium oxide hydroxide evaporation during oxidation of 304L at 873 K in the presence of 10% water vapor. *Oxidation of Metals*, 52(1-2), 95–111.
- Atomic Energy of Canada Limited (2005). *CANDU®-6 Technical Summary*. Mississauga, ON, Canada.
- Avincola, V. A., Grosse, M., Stegmaier, U., Steinbrueck, M., and Seifert, H. (2015). Oxidation at high temperatures in steam atmosphere and quench of silicon carbide composites for nuclear application. *Nuclear Engineering and Design*, 295, 468–478.
- Bachhav, M., Odette, G. R., and Marquis, E. A. (2014). Microstructural changes in a neutron-irradiated Fe–15at.alloy. *Journal of Nuclear Materials*, 454(1), 381–386.

- Balat, M. J. (1996). Determination of the active-to-passive transition in the oxidation of silicon carbide in standard and microwave-excited air. *Journal of the European Ceramic Society*, 16(1), 55–62.
- Bennett, M. and Tuson, A. (1989). Improved high temperature oxidation behaviour of alloys by ion implantation. *Materials Science and Engineering : A*, 116, 79–87.
- Berthod, P., Allègre, F., and Kretz, E. (2016). Influence of Titanium on the High Temperature Oxidation and Chromia Volatilization of Ternary Ni–Cr–C Alloys. *Oxidation of Metals*, 86(5), 581–595.
- Bieman, D. and Bird, P. (1992). *The Moderator Liquid Poison System*. Reactor & Auxiliaries. Course 233. Module 4. Nuclear Training Center., Chalk River, ON, Canada.
- Birch, F. (1942). Thermal conductivity and diffusivity. *Handbook of physical constants : Geol. Soc. America Spec. Paper*, 36, 243–266.
- Boyack, B., Catton, I., Duffey, R., Griffith, P., Katsma, K., Lellouche, G., Levy, S., Rohatgi, U., Wilson, G., Wulff, W., and Zuber, N. (1990). Quantifying reactor safety margins part 1 : An overview of the code scaling, applicability, and uncertainty evaluation methodology. *Nuclear Engineering and Design*, 119(1), 1–15.
- Brachet, J., Le Saux, M., Le Flem, M., Urvoy, S., Rouesne, E., Guilbert, T., Cobac, C., Lahogue, F., Rousselot, J., Tupin, M., *et al.* (2015). On-going studies at CEA on chromium coated zirconium based nuclear fuel claddings for enhanced accident tolerant LWRs fuel. *Top Fuel 2015, September 13-17*. Zurich, Switzerland, 13–19.
- Brady, M., Wright, I., and Gleeson, B. (2000). Alloy design strategies for promoting protective oxide-scale formation. *Jom*, 52(1), 16–21.
- Bramman, J., Sharpe, R., Thom, D., and Yates, G. (1968). Metallic fission-product inclusions in irradiated oxide fuels. *Journal of Nuclear Materials*, 25(2), 201–215.
- Brassfield, H., White, J., Sjodahl, L., and Bittel, J. (1968). Recommended Property and Reactions Kinetics Data For Use in Evaluating a Light-Water-Cooled Reactor Loss-Of-Coolant Incident Involving Zircaloy-4 Or 304SS Clad UO₂. Rapport technique, General Electric Co., Cincinnati, OH (United States). Missile and Space Division, GEMP-482.
- Braun, J., Guéneau, C., Alpettaz, T., Sauder, C., Brackx, E., Domenger, R., Gossé, S., and Balbaud-Célrier, F. (2017). Chemical compatibility between UO₂ fuel and SiC cladding for LWRs. Application to ATF (Accident-Tolerant Fuels). *Journal of Nuclear Materials*, 487, 380–395.
- Brede, M. and Haasen, P. (1988). The brittle-to-ductile transition in doped silicon as a model substance. *Acta metallurgica*, 36(8), 2003–2018.

- Bruno, J. and Ewing, R. (2006). Spent nuclear fuel. *Elements*, 2(6), 343–349.
- Burakov, B., Anderson, E., Shabalev, S., Strykanova, E., Ushakov, S., Trotabas, M., Blanc, J., Winter, P., and Duco, J. (1996). The behavior of nuclear fuel in first days of the Chernobyl accident. *MRS Online Proceedings Library Archive*, 465.
- Burns, P., Ewing, R., Navrotsky, A., *et al.* (2012). Nuclear fuel in a reactor accident. *Science (Washington)*, 335(6073), 1184–1188.
- Canadian Nuclear Safety Commission (2014). RD-337 : Design of New Nuclear Power Plants. <https://goo.gl/joq1kh>. Online; accessed 5 February 2018.
- Carmack, J., Goldner, F., Bragg-Sitton, S. M., and Snead, L. L. (2013). Overview of the US DOE accident tolerant fuel development program. *Proceeding of LWR Fuel Performance Meeting, Top Fuel 2013, September 15-19*. Charlotte, NC, USA.
- Carpenter, D. M. (2010). *An assessment of silicon carbide as a cladding material for light water reactors*. Thèse de doctorat, Massachusetts Institute of Technology.
- Carslaw, H. and Jaeger, J. (1959). Conduction of heat in solids. *Oxford : Clarendon Press*, 1959, 2nd ed.
- Causey, R. A., Karnesky, R. A., and San Marchi, C. (2012). Tritium barriers and tritium diffusion in fusion reactors. *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, chapitre 4. 511–549.
- Chaplin, R. (2014). *The Essential CANDU, A Textbook on the CANDU Nuclear Power Plant Technology*, chapitre Genealogy of CANDU Reactors. [Garland \(2014\)](#).
- Charpenel, J., Lemoine, F., Sato, I., Struwe, D., and Pfrang, W. (2000). Fuel pin behavior under the slow power ramp transients in the CABRI-2 experiments. *Nuclear technology*, 130(3), 252–271.
- Chen, S. and Yuan, C. (2017). Neutronic Analysis on Potential Accident Tolerant Fuel-Cladding Combination U₃Si₂-FeCrAl. *Science and Technology of Nuclear Installations*, 2017(1), 1–12.
- Cheng, H. (1980). Review of light water reactor safety. *Joint nuclear power and technology conference, Decembre 14-21, 1980*. Taipei, Taiwan.
- Cheng, T., Keiser, J. R., Brady, M. P., Terrani, K. A., and Pint, B. A. (2012). Oxidation of fuel cladding candidate materials in steam environments at high temperature and pressure. *Journal of Nuclear Materials*, 427(1), 396–400.
- Chevalier, S. (2014). What did we learn on the reactive element effect in chromia scale since Pfeil's patent ? *Materials and Corrosion*, 65(2), 109–115.
- Childs, B. (1963). Fission product effects in uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, 9(3), 217–244.

- Cinbiz, M. N., Brown, N. R., Terrani, K. A., Lowden, R. R., and Erdman, D. (2017). A pulse-controlled modified-burst test instrument for accident-tolerant fuel cladding. *Annals of Nuclear Energy*, 109, 396–404.
- Corey, G. (1979). A brief review of the accident at Three Mile Island. *IAEA Bulletin*, 21(5), 54–59.
- Cotterell, B. and Rice, J. (1980). Slightly curved or kinked cracks. *International journal of fracture*, 16(2), 155–169.
- Cottingham, W. and Greenwood, D. (2002). *Introduction to nuclear physics*. Cambridge University Press, Cambridge, UK.
- Cox, B. (2005). Some thoughts on the mechanisms of in-reactor corrosion of zirconium alloys. *Journal of Nuclear materials*, 336(2-3), 331–368.
- Cubicciotti, D. (1950). The Oxidation of Zirconium at High Temperatures. *Journal of the American Chemical Society*, 72(9), 4138–4141.
- D’Antonio, M. and Donnelly, J. (1997). Explicit Core-Follow Simulations for a CANDU® 6 Reactor Fuelled with Recovered-Uranium CANFLEX® Bundles. *Proceedings of the Fifth International CNS CANDU Fuel Conference, September 21-25*. Toronto, ON, Canada, 82–90.
- Denning, R. (1985). The Three Mile Island unit 2 core : a post-mortem examination. *Annual review of energy*, 10(1), 35–52.
- Donnelly, J. (1986). WIMS-CRNL : A user’s manual for the Chalk River version of WIMS. Tech. Rep. AECL-8955. Canada.
- Dryepondt, S., Unocic, K. A., Hoelzer, D. T., Massey, C. P., and Pint, B. A. (2018). Development of low-Cr ODS FeCrAl alloys for accident-tolerant fuel cladding. *Journal of Nuclear Materials*.
- d’Annuncci, F., Sari, C., and Schumacher, G. (1977). Migration of metallic fission products in reactor oxide fuels. *Nuclear Technology*, 35(1), 80–86.
- Easler, T., Bradt, R., and Tressler, R. (1981). Strength distributions of SiC ceramics after oxidation and oxidation under load. *Journal of the American Ceramic Society*, 64(12), 731–734.
- Edmondson, P., Briggs, S., Yamamoto, Y., Howard, R., Sridharan, K., Terrani, K., and Field, K. (2016). Irradiation-enhanced α' precipitation in model FeCrAl alloys. *Scripta Materialia*, 116, 112–116.
- Erbacher, F. and Leistikow, S. (1987). Zircaloy fuel cladding behavior in a loss-of-coolant accident : A review. *Zirconium in the Nuclear Industry*, ASTM International, West Conshohocken, PA, USA.

- Erbacher, F., Neitzel, H., Rosinger, H., Schmidt, H., and Wiehr, K. (1982). Burst criterion of Zircaloy fuel claddings in a loss-of-coolant accident. *Zirconium in the Nuclear Industry*, ASTM International, West Conshohocken, PA, USA.
- Farkas, R. (2014). *Moderator displacers for reducing coolant void reactivity in CANDU reactors : a neutronics scoping study*. Mémoire de maîtrise, Institute Of Technology, University of Ontario, Canada.
- Fechter, M. *et al.* (2013). Severe Accident Test Station (SATS) : development and implementation of program and national capacity. *ATF Integration Meeting NNSA Site Offices*, Las Vegas, NV, USA.
- Field, K. G., Briggs, S. A., Sridharan, K., Howard, R. H., and Yamamoto, Y. (2017a). Mechanical properties of neutron-irradiated model and commercial FeCrAl alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 489, 118–128.
- Field, K. G., Hu, X., Littrell, K. C., Yamamoto, Y., and Snead, L. L. (2015). Radiation tolerance of neutron-irradiated model Fe-Cr-Al alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 465, 746–755.
- Field, K. G., Yamamoto, Y., Pint, B. A., Gussev, M. N., and Terrani, K. A. (2017b). Accident Tolerant FeCrAl Fuel Cladding : Current Status Towards Commercialization. *Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems*. Springer, 165–173.
- Footner, P., Holmes, D., and Mortimer, D. (1967). Oxidation of iron–chromium binary alloys. *Nature*, 216(5110), 54.
- Freshley, M., Brite, D., Daniel, J., and Hart, P. (1976). Irradiation-induced densification of UO₂ pellet fuel. *Journal of Nuclear Materials*, 62(2-3), 138–166.
- Fuchs, K. (1946). Efficiency for very slow assembly : Report. Rapport technique, Los Alamos Scientific Laboratory, LA-596, US Departement of Energy. Washington, DC, USA.
- Fukushima Nuclear Accident Independent Investigation Commission (2012). *The official report of the Fukushima nuclear accident independent investigation commission : Executive summary*. National Diet of Japan. Government of Japan, Chiyoda-ku, Tokyo, Japan.
- Fütterer, M. A., Fu, L., Sink, C., de Groot, S., Pouchon, M., Kim, Y. W., Carré, F., and Tachibana, Y. (2014). Status of the very high temperature reactor system. *Progress in Nuclear Energy*, 77, 266–281.
- GARLAND, W., éditeur (2014). *The Essential CANDU, A Textbook on the CANDU Nuclear Power Plant Technology*. University Network of Excellence in Nuclear Engineering (UNENE), Hamilton, ON, Canada.
- Garzarolli, F., Jan, R., and Stehle, H. (1979). The main causes of fuel element failure in water-cooled power reactors. *Atomic Energy Review*, 17(1), 31–128.

- Gauntt, R., Cole, R., Erickson, C., Gido, R., Gasser, R., Rodriguez, S., and Young, M. (2005). MELCOR computer code manuals. *Sandia National Laboratories, NUREG/CR, 6119*.
- Geelhood, K., Luscher, W. G., Beyer, C., and Flanagan, M. (2011). FRAPCON-3.4 : A Computer Code for the Calculation of Steady State Thermal-mechanical Behavior of Oxide Fuel Rods for High Burnup. Rapport technique, US Nuclear Regulatory Commission, Office of Nuclear Regulatory Research Richland, WA. NUREG/CR-7022, Vol. 1.
- Geiger, G. H. and Poirier, D. R. (1973). *Transport phenomena in metallurgy*. Addison-Wesley series in metallurgy and materials. Addison-Wesley Publishing Co., Boston, Massachusetts, USA.
- General Electric Co. (1969). Eighth Annual Report-AEC Fuels and Materials Development Program. Rapport technique, General Electric Co., Richland, WA (United States), GEMP-1012.
- George, N. M., Terrani, K., Powers, J., Worrall, A., and Maldonado, I. (2015). Neutronic analysis of candidate accident-tolerant cladding concepts in pressurized water reactors. *Annals of Nuclear Energy*, 75, 703–712.
- Gieré, R. and Stille, P. (2004). Energy, Waste and the Environment : a Geochemical Perspective. Geological Society of London, Special Publications, 236.
- Glasstone, S. and Sesonske, A. (2012). *Nuclear reactor engineering : reactor systems engineering*. Springer Science & Business Media, New York, NY, USA.
- Goeddel, W. (1967). Coated-Particle Fuels in High-Temperature Reactors : A Summary of Current Applications. *Nuclear Applications*, 3(10), 599–614.
- Goldman, K. (1953). Report of the March 1953 Meeting of the Zirconium Alloy Corrosion Committee. Rapport technique, Westinghouse Electric Corp. Atomic Power Div., Pittsburgh.
- Goldner, F. (2012). Development strategy for advanced LWR fuels with enhanced accident tolerance. Rapport technique, US.DOE Office of Nuclear Energy (NE), DOE/NE-061212-NEAC-Goldner.
- Gordon, S., Schmidt, K., and Honekamp, J. (1983). An analysis of the hydrogen bubble concerns in the Three-Mile Island Unit-2 reactor vessel. *Radiation Physics and Chemistry (1977)*, 21(3), 247–258.
- Greenblatt, J., Brown, N., Slaybaugh, R., Wilks, T., Stewart, E., and McCoy, S. (2017). The future of low-carbon electricity. *Annual Review of Environment and Resources*, 42, 289–316.

- Griffith, G. W. (2011). US Department of Energy Accident Resistant SiC Clad Nuclear Fuel Development. Rapport technique, Idaho National Laboratory, INL/CON-11-23186.
- Griffiths, J. (1983). *Reactor Physics and Economic Aspects of the CANDU Reactor System*. Chalk River Nuclear Laboratories, Chalk River, ON, Canada.
- Grimes, R. and Catlow, C. (1991). The stability of fission products in uranium dioxide. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, 335(1639), 609–634.
- Grobner, P. (1973). The 885F (475C) embrittlement of ferritic stainless steels. *Metallurgical Transactions*, 4(1), 251–260.
- Große, M., Steinbrück, M., Stuckert, J., Kastner, A., and Schillinger, B. (2012). Application of neutron radiography to study material processes during hypothetical severe accidents in nuclear reactors. *Journal of Materials Science*, 47(18), 6505–6512.
- Gulbransen, E. A. and Jansson, S. A. (1972). The high-temperature oxidation, reduction, and volatilization reactions of silicon and silicon carbide. *Oxidation of metals*, 4(3), 181–201.
- Gupta, F. (2008). *Étude du comportement du produit de fission césium dans le dioxyde d’uranium par méthode ab initio*. Thèse de doctorat, Université Paris XI.
- Hagel, W. C. (1962). Factors controlling the high-temperature oxidation of chromium. *Journal of the electrochemical society*, 109(3), C78–C78.
- Hanson, D. (2004). A review of radionuclide release from HTGR cores during normal operation. *EPRI Report*, 1009382.
- Hébert, A. (1987). Development of the nodal collocation method for solving the neutron diffusion equation. *Annals of Nuclear Energy*, 14(10), 527–541.
- Hébert, A. (2016). *Applied reactor physics*. Presses Inter. Polytechnique, Montreal, QC, Canada.
- Hébert, A. (2017). A User Guide for TRIVAC Version4. *Institut de génie nucléaire, Département de génie mécanique, École Polytechnique de Montréal. Montréal, QC, Canada, Tech. Rep. IGE-293*.
- Hébert, A. and Marleau, G. (1991). Generalization of the Stamm’ler method for the self-shielding of resonant isotopes in arbitrary geometries. *Nuclear Science and Engineering*, 108(3), 230–239.
- Hébert, A., Sekki, D., and Chambon, R. (2018). A User Guide for DONJON Version5. *Institut de génie nucléaire, Département de génie mécanique, École Polytechnique de Montréal. Montréal, QC, Canada, Tech. Rep. IGE-344*.
- Hedin, A. (1997). Spent nuclear fuel—how dangerous is it. Rapport technique, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., Stockholm (Sweden), SKB-TR-97-13.

- Hellström, K., Israelsson, N., Mortazavi, N., Canovic, S., Halvarsson, M., Svensson, J.-E., and Johansson, L.-G. (2015). Oxidation of a Dispersion-Strengthened Powder Metallurgical FeCrAl Alloy in the Presence of O₂ at 1100°C : The Influence of Water Vapour. *Oxidation of Metals*, 83(5-6), 533–558.
- Henry, J., Zhou, G., and Ward, T. (2007). Lessons from the past : materials-related issues in an ultra-supercritical boiler at Eddystone plant. *Materials at High Temperatures*, 24(4), 249–258.
- Hewlett, R. and Duncan, F. (1974). *Nuclear navy, 1946–1962*. The University of Chicago Press, Chicago, IL, USA.
- Hindam, H. and Whittle, D. (1983). Evidence for the Growth Mechanism of Cr₂O₃ at Low Oxygen Potentials. *Journal of the Electrochemical Society*, 130(7), 1519–1523.
- Hirayama, H., Kawakubo, T., Goto, A., and Kaneko, T. (1989). Corrosion behavior of silicon carbide in 290C water. *Journal of the American Ceramic Society*, 72(11), 2049–2053.
- Hofmann, P. (1999). Current knowledge on core degradation phenomena, a review. *Journal of nuclear materials*, 270(1-2), 194–211.
- Hofmann, P., Hagen, S. J., Schanz, G., and Skokan, A. (1989). Reactor core materials interactions at very high temperatures. *Nuclear Technology*, 87(1), 327–333.
- Hou, P. and Stringer, J. (1995). The effect of reactive element additions on the selective oxidation, growth and adhesion of chromia scales. *Materials Science and Engineering : A*, 202(1-2), 1–10.
- Hou, P. Y. (2011). The reactive element effect—past, present and future. *Materials Science Forum*, 696, 39–44.
- Hu, X., Terrani, K. A., Wirth, B. D., and Snead, L. L. (2015). Hydrogen permeation in FeCrAl alloys for LWR cladding application. *Journal of Nuclear Materials*, 461, 282–291.
- Hurst, D. (1997). *Canada Enters the Nuclear Age : a technical history of Atomic Energy of Canada Limited as seen from its research laboratories*. McGill-Queen's University Press.
- Hurst, D. and Boyd, F. (1972). Reactor licensing and safety requirements. *Canadian Nuclear Association* 18, 195.
- Hussey, R., Papaioacovou, P., Shen, J., Mitchell, D., and Graham, M. (1989). The effect of ceria coatings on the high-temperature oxidation of iron-chromium alloys. *Materials Science and Engineering : A*, 120, 147–151.
- IAEA (1966). Thermal Conductivity of Uranium Dioxide. Rapport technique, IAEA, Vienna, IAEA-TECDOC-59.

IAEA (1993). Fuel Failure in Normal Operation of Water Reactors : Experience, Mechanisms and Management. Rapport technique, IAEA, Vienna, IAEA-TECDOC-709.

IAEA (2000). Safety of Nuclear Power Plants : Design, Safety Standards Series No. NS-R-1, IAEA, Vienna. Rapport technique, IAEA, Vienna, IAEAL 12-00719.

IAEA (2005). Assessment of Defence in Depth for Nuclear Power Plants, Safety Reports Series No.46, IAEA, Vienna. Rapport technique, IAEA, Vienna, IAEAL 04-00388.

IAEA (2015). The Fukushima Daiichi Accident : Description and Context of the Accident. Rapport technique, Technical Volume 1/5 : Description and Context of the Accident, IAEAL 15-00988.

Icenhower, J. P. and Dove, P. M. (2000). The dissolution kinetics of amorphous silica into sodium chloride solutions : effects of temperature and ionic strength. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 64(24), 4193–4203.

Idarraga-Trujillo, I., Le Flem, M., Brachet, J.-C., Le Saux, M., Hamon, D., Muller, S., Vandenberghe, V., Tupin, M., Papin, E., Monsifrot, E., *et al.* (2013). Assessment at CEA of coated nuclear fuel cladding for LWRs with increased margins in LOCA and beyond LOCA conditions. *Conference Paper LWR Fuel Performance Meeting, Top Fuel 2013, September 15-19*. Charlotte, NC, USA, vol. 2, 860–867.

Iglesias, F., Duncan, D., Sagat, S., and Sills, H. (1985). Verification of the FROM model for Zircaloy oxidation during high temperature transients. *Journal of Nuclear Materials*, 130, 36–44.

Ishibashi, R., Tanabe, S., Kondo, T., Yamashita, S., and Nagase, F. (2017a). Improving the corrosion resistance of silicon carbide for fuel in BWR environments by using a metal coating. *Water Reactor Fuel Performance Meeting, September 10-14*. Jeju Island, Korea.

Ishibashi, R., Tanabe, S., Kondo, T., Yamashita, S., and Nagase, F. (2017b). Improving the corrosion resistance of silicon carbide for fuel in BWR environments by using a metal coating. *Water Reactor Fuel Performance Meeting (WRFPM 2017), September 10-14*. Jeju, Korea.

Ishida, T., Harayama, Y., and Yaguchi, S. (1986). Oxidation of 304 stainless steel in high-temperature steam. *Journal of Nuclear Materials*, 140(1), 74–84.

Jianian, S., Longjiang, Z., and Tiefan, L. (1997). High-temperature oxidation of Fe-Cr alloys in wet oxygen. *Oxidation of metals*, 48(3-4), 347–356.

Johnston, W. (1977). Zircaloy : Three Years after the Hearings. *Zirconium in the Nuclear Industry*, ASTM International, West Conshohocken, PA, USA.

- Kaneko, M., Miura, N., Fujiwara, A., and Yamamoto, M. (2004). Evaluation of gas generation rate by metal corrosion in the reducing environment. *The Radioactive Waste Management Funding and Research Center, RWMC-TRE-03003*.
- Karoutas, Z., Brown, J., Atwood, A., Hallstadius, L., Lahoda, E., Ray, S., and Bradfute, J. (2018). The maturing of nuclear fuel : Past to Accident Tolerant Fuel. *Progress in Nuclear Energy*, 102, 68–78.
- Kass, S. (1954). Report of October 1954 Meeting of the Zirconium Alloy Corrosion Committee. Rapport technique, Westinghouse Electric Corp. Atomic Power Div., Pittsburgh, WAPD-MM-713.
- Kastanya, D., Boyle, S., Hopwood, J., and Park, J. H. (2013). The impact of power coefficient of reactivity on CANDU-6 reactors. *Nuclear Engineering and Technology*, 45(5), 573–580.
- Katoh, Y., Kohyama, A., Nozawa, T., and Sato, M. (2004). SiC/SiC composites through transient eutectic-phase route for fusion applications. *Journal of Nuclear Materials*, 329, 587–591.
- Katoh, Y., Ozawa, K., Shih, C., Nozawa, T., Shinavski, R. J., Hasegawa, A., and Snead, L. L. (2014). Continuous SiC fiber, CVI SiC matrix composites for nuclear applications : Properties and irradiation effects. *Journal of Nuclear Materials*, 448(1-3), 448–476.
- Kaufmann, A. (1948). Technical Progress Report For the Period February Through April 1948 At MIT. Rapport technique, Massachusetts Inst. of Tech., Cambridge. Metallurgical Group, MIT-1004.
- Kim, D., Lee, H.-G., Park, J. Y., and Kim, W.-J. (2015a). Fabrication and measurement of hoop strength of SiC triplex tube for nuclear fuel cladding applications. *Journal of Nuclear Materials*, 458, 29–36.
- Kim, D., Lee, H.-G., Park, J. Y., Park, J.-Y., and Kim, W.-J. (2015b). Effect of dissolved hydrogen on the corrosion behavior of chemically vapor deposited SiC in a simulated pressurized water reactor environment. *Corrosion Science*, 98, 304–309.
- Kim, H.-E. and Moorhead, A. J. (1989). Effects of Gaseous Corrosion on the Strength of SiC and Si₃N₄. *Ceram. Trans.*, 10, 81–96.
- Kim, H.-G., Kim, I.-H., Jung, Y.-I., Park, D.-J., Park, J.-Y., and Koo, Y.-H. (2013a). High-temperature oxidation behavior of Cr-coated zirconium alloy. *Proceeding of LWR Fuel Performance Meeting, Top Fuel 2013, September 15-19*. Charlotte, NC, USA, 842–846.
- Kim, W.-J., Hwang, H. S., Park, J. Y., and Ryu, W.-S. (2003). Corrosion behaviors of sintered and chemically vapor deposited silicon carbide ceramics in water at 360C. *Journal of materials science letters*, 22(8), 581–584.

- Kim, W.-J., Kim, D., and Park, J. Y. (2013b). Fabrication and material issues for the application of SiC composites to LWR fuel cladding. *Nuclear Engineering and Technology*, 45(4), 565–572.
- Kleykamp, H. (1985). The chemical state of the fission products in oxide fuels. *Journal of Nuclear Materials*, 131(2-3), 221–246.
- Kofstad, P. (1985). On the formation of porosity and microchannels in growing scales. *Oxidation of Metals*, 24(5-6), 265–276.
- Kondo, S., Hinoki, T., Nonaka, M., and Ozawa, K. (2015). Irradiation-induced shrinkage of highly crystalline SiC fibers. *Acta Materialia*, 83, 1–9.
- Koning, A., Forrest, R., Kellett, M., Mills, R., Henriksson, H., Rugama, Y., *et al.* (2006). *The JEFF-3.1 nuclear data library*. OECD, Paris, France.
- Koo, Y., Yang, J., Park, J., Kim, K., Kim, H., Kim, D., Jung, Y., and Song, K. (2014). KAERI's development of LWR accident-tolerant fuel. *Nuclear Technology*, 186(2), 295–304.
- Koyanagi, T. and Katoh, Y. (2017). Mechanical properties of SiC composites neutron irradiated under light water reactor relevant temperature and dose conditions. *Journal of Nuclear Materials*, 494, 46–54.
- Krishnan, R. and Asundi, M. (1981). Zirconium alloys in nuclear technology. *Proceedings of the Indian Academy of Sciences Section C : Engineering Sciences*, 4(1), 41–56.
- Lassmann, K., Walker, C., Van de Laar, J., and Lindström, F. (1995). Modelling the high burnup UO₂ structure in LWR fuel. *Journal of nuclear materials*, 226(1-2), 1–8.
- Ledergerber, G., Valizadeh, S., Wright, J., Limbäck, M., Hallstadius, L., Gavillet, D., Abolhassani, S., Nagase, F., Sugiyama, T., Wiesenack, W., *et al.* (2010). Fuel performance beyond design—exploring the limits. *Proceedings of the LWR Fuel Performance Meeting/-Top Fuel/WRFPM, September 26-29*. Orlando, Florida, USA, 513–524.
- Lee, Y. and Kazimi, M. S. (2015). A structural model for multi-layered ceramic cylinders and its application to silicon carbide cladding of light water reactor fuel. *Journal of Nuclear Materials*, 458, 87–105.
- Lee, Y., McKrell, T. J., Yue, C., and Kazimi, M. S. (2013). Safety assessment of SiC cladding oxidation under loss-of-coolant accident conditions in light water reactors. *Nuclear Technology*, 183(2), 210–227.
- Leppänen, J. (2013). Serpent—a continuous-energy Monte Carlo reactor physics burnup calculation code. *VTT Technical Research Centre of Finland*, 4.
- Lewins, J. (1978). *Nuclear reactor kinetics and control*. Pergamon Press, Oxford, UK.

- Lewis, B., Cox, D., and Iglesias, F. (1993). A kinetic model for fission-product release and fuel oxidation behaviour for zircaloy-clad fuel elements under reactor accident conditions. *Journal of nuclear materials*, 207, 228–241.
- Lewis, B., Iglesias, F., Dickson, R., and Williams, A. (2009). Overview of high-temperature fuel behaviour with relevance to CANDU fuel. *Journal of Nuclear Materials*, 394(1), 67–86.
- Lewis, B., Thompson, W., and Iglesias, F. (2012). *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, vol. 2, chapitre Fission product chemistry in oxide fuels. 515–546.
- Lewis, W. (1956). The Canadian research reactors and their uses. *British Journal of Applied Physics*, 7(S5), S96.
- Li, N., Parker, S. S., and Wood, E. S. (2017). Oxide Morphology of a FeCrAl Alloy, Kanthal APMT, following Extended Aging at 300-600C. Rapport technique, Los Alamos National Laboratory (LANL), LA-UR-17-28480.
- Ligou, J. (1997). *Introduction au génie nucléaire*. Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, Suisse.
- Limbäck, M. and Andersson, T. (1996). A model for analysis of the effect of final annealing on the in-and out-of-reactor creep behavior of zircaloy cladding. *Zirconium in the Nuclear Industry : Eleventh International Symposium, September 11-14*. STP1295-EB, ASTM International, Garmisch-Partenkirchen, Germany.
- Lister, D., Davidson, R., and McAlpine, E. (1987). The mechanism and kinetics of corrosion product release from stainless steel in lithiated high temperature water. *Corrosion science*, 27(2), 113–140.
- Liu, M., Brown, N. R., Terrani, K. A., Ali, A. F., Blandford, E. D., and Wachs, D. M. (2017). Potential impact of accident tolerant fuel cladding critical heat flux characteristics on the high temperature phase of reactivity initiated accidents. *Annals of Nuclear Energy*, 110, 48–62.
- Lucuta, P., Matzke, H., and Hastings, I. (1996). A pragmatic approach to modelling thermal conductivity of irradiated UO₂ fuel : Review and recommendations. *Journal of Nuclear Materials*, 232(2), 166–180.
- Lustman, B. and Kerze, F. (1955). *The metallurgy of zirconium*, vol. 4. McGraw-Hill Book Company, Belmont, Massachusetts, USA.
- Luxat, J. C. (2009). Thermal-Hydraulic aspects of progression to severe accidents in CANDU reactors. *Nuclear Technology*, 167(1), 187–210.
- Maréchal, L., Lesage, B., Huntz, A., and Molins, R. (2003). Oxidation behavior of ODS Fe–Cr–Al alloys : aluminum depletion and lifetime. *Oxidation of Metals*, 60(1-2), 1–28.

- Markelov, V., Novikov, V., Shevyakov, A., Gusev, A., Perehud, M., Konkov, V., Eremin, S., Pokrovsky, A., and Obukhov, A. (2018). Preliminary Irradiation Effect on Corrosion Resistance of Zirconium Alloys. *Zirconium in the Nuclear Industry : 18th International Symposium, May 15-19*. ASTM International, Hilton Head, SC, USA.
- Marleau, G. (2005). New Geometries Processing in DRAGON : The NXT : Module. *Institut de génie nucléaire, Département de génie physique, École Polytechnique de Montréal*.
- Marleau, G., Hébert, A., and Roy, R. (1992). New computational methods used in the lattice code DRAGON. *Topical Meeting on Advances in Reactor Physics, March 8-11*. Charleston Sheraton, Charleston, SC, USA, vol. 1, 8–11.
- Marleau, G., Hébert, A., and Roy, R. (2018). A User Guide for DRAGON Version 5. *Institut de génie nucléaire, Département de génie physique, École Polytechnique de Montréal. Montréal, QC, Canada, Tech. Rep. IGE-335*.
- Masuyama, F. (2001). History of power plants and progress in heat resistant steels. *ISIJ international*, 41(6), 612–625.
- Matsuo, Y. (1987). Thermal creep of zircaloy-4 cladding under internal pressure. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 24(2), 111–119.
- Merckx, K. (1958). Fuel element design handbook. Rapport technique, General Electric Co., Richland, WA (United States). Hanford Atomic Products Operation. HW-51000-Del, ON : DE95006604, TRN : 95 :002746.
- Miller, G., Petti, D., and Maki, J. (2002). Development of an integrated performance model for TRISO-coated gas reactor particle fuel. *High Temperature Reactor 2002 Conference, April 22-24*. Citeseer, Petten, NL, USA, 25–29.
- Minford, E., Costello, J., Tsong, I., and Tressler, R. (1983). Oxidation effects on crack growth and blunting in SiC ceramics. *Fracture Mechanics of Ceramics*, 6, 511.
- Mortimer, D. and Sharp, W. (1968). Oxidation of Fe-Cr Binary Alloys. *British Corrosion Journal*, 3(2), 61–67.
- Motta, A., Couet, A., and Comstock, R. (2015). Corrosion of Zirconium Alloys Used for Nuclear Fuel Cladding. *Annual Review of Materials Research*, 45(1), 311–343.
- Naceur, A. and Marleau, G. (2018). Neutronic analysis for accident tolerant cladding candidates in CANDU-6 reactors. *Annals of Nuclear Energy*, 113, 147–161.
- Narushima, T., Goto, T., and Hirai, T. (1989). High-Temperature Passive Oxidation of Chemically Vapor Deposited Silicon Carbide. *Journal of the American Ceramic Society*, 72(8), 1386–1390.

- Nishiyama, Y., Hayaso, Y., and Otsuka, N. (2003). Corrosion resistant boiler tube materials for advanced coal fired steam generating systems. *Proceedings of the 28th International Technical Conference on Coal Utilization & Fuel Systems, March 9-13*. Florida, USA.
- Nordheim, L. (1946). *Pile kinetics*, vol. 35. War Department, Corps of Engineers, Office of the District Engineer, Manhattan District, USA.
- Nuclear Energy Agency (2012). Nuclear Fuel Safety Criteria : Technical Review. Rapport technique, OECD, NEA, Report No.7072, Second Ed.
- Olander, D. (1994). Materials chemistry and transport modeling for severe accident analyses in light-water reactors I : External cladding oxidation. *Nuclear Engineering and Design*, 148(2-3), 253–271.
- Olander, D. R. (1976). Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements : solutions to problems. Rapport technique, California Univ., Berkeley (USA). Dept. of Nuclear Engineering, TID-26711-P2.
- Olszewski, T. (2012). *Oxidation mechanisms of materials for heat exchanging components in CO₂/H₂O-containing gases relevant to oxy-fuel environments*, vol. 159. Forschungszentrum Jülich, Wilhelm-Johnen-Straße, Germany.
- Opila, E. and Jacobson, N. (1995). SiO (g) formation from SiC in mixed oxidizing-reducing gases. *Oxidation of metals*, 44(5-6), 527–544.
- Opila, E. J. (2003). Oxidation and volatilization of silica formers in water vapor. *Journal of the American Ceramic Society*, 86(8), 1238–1248.
- Opila, E. J. and Hann, R. E. (1997). Paralinear oxidation of CVD SiC in water vapor. *Journal of the American Ceramic Society*, 80(1), 197–205.
- Opila, E. J., Smialek, J. L., Robinson, R. C., Fox, D. S., and Jacobson, N. S. (1999). SiC recession caused by SiO₂ scale volatility under combustion conditions : II, thermodynamics and gaseous-diffusion model. *Journal of the American Ceramic Society*, 82(7), 1826–1834.
- Ott, L., Robb, K., and Wang, D. (2014). Preliminary assessment of accident-tolerant fuels on LWR performance during normal operation and under DB and BDB accident conditions. *Journal of Nuclear Materials*, 448(1-3), 520–533.
- Ovanes, M., Rife, G., Cormier, M., and Hopwood, J. (2011). Enhanced CANDU-6 : Reactor core safety design. *Proceedings of International Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP), May 2-6*. Nice, France.
- Oversby, V. (1994). Nuclear waste materials. *Materials Science and Technology*, American Cancer Society, Atlanta, GA, USA, vol. 10B. 391–442.

- Page, R. (1976). *Canadian Power Reactor Fuel*. Atomic Energy of Canada Limited, Power Projects, Mississauga, ON, Canada.
- Parish, C. M., Terrani, K. A., Kim, Y.-J., Koyanagi, T., and Katoh, Y. (2017). Microstructure and hydrothermal corrosion behavior of NITE-SiC with various sintering additives in LWR coolant environments. *Journal of the European Ceramic Society*, 37(4), 1261–1279.
- Park, J.-Y. *et al.* (2012). Development of Advanced Claddings for Suppressing the Hydrogen Emission in the Accident Condition. *OECD/NEA Workshop on Accident Tolerant Fuels for LWRs*, NEA Headquarters, September 10-12. Issy-les-Moulineaux, France.
- Park, S.-Y. and Ahn, K.-I. (2012). Comparative analysis of station blackout accident progression in typical PWR, BWR, and PHWR. *Nuclear Engineering and Technology*, 44(3), 311–322.
- Pawel, R., Cathcart, J., and Campbell, J. (1979). The oxidation of zircaloy-4 at 900 and 1100°C in high pressure steam. *Journal of Nuclear Materials*, 82(1), 129–139.
- Peñalva, I., Alberro, G., Aranburu, J., Legarda, F., Sancho, J., Vila, R., and Ortiz, C. (2013). Influence of the Cr content on the permeation of hydrogen in Fe alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 442(1-3), S719–S722.
- Peñalva, I., Alberro, G., Legarda, F., Vila, R., and Ortiz, C. (2014). Influence of Cr content on the diffusive transport parameters and trapping of hydrogen in Fe alloys. *Fusion Engineering and Design*, 89(7-8), 1628–1632.
- Pettersson, K., Chung, H., Billone, M., Fuketa, T., Nagase, F., Grandjean, C., Hache, G., Papin, J., Heins, L., Hozer, Z., *et al.* (2009). Nuclear Fuel Behaviour in Loss-of-Coolant Accident (LOCA) Conditions. Rapport technique, Organisation for Economic Co-Operation and Development, NEA-6846.
- Pieraggi, B. and Rapp, R. (1988). Stress generation and vacancy annihilation during scale growth limited by cation-vacancy diffusion. *Acta Metallurgica*, 36(5), 1281–1289.
- Pint, B. (1996). Experimental observations in support of the dynamic-segregation theory to explain the reactive-element effect. *Oxidation of metals*, 45(1-2), 1–37.
- Pint, B., Garratt-Reed, A., and Hobbs, L. (2001). Analytical electron-microscopy study of the breakdown of α -Al₂O₃ scales formed on oxide dispersion-strengthened alloys. *Oxidation of Metals*, 56(1-2), 119–145.
- Pint, B., Terrani, K., Brady, M., Cheng, T., and Keiser, J. (2013). High temperature oxidation of fuel cladding candidate materials in steam–hydrogen environments. *Journal of Nuclear Materials*, 440(1–3), 420–427.

- Pint, B. A. (2003). Optimization of Reactive-Element Additions to Improve Oxidation Performance of Alumina-Forming Alloys. *Journal of the American Ceramic Society*, 86(4), 686–95.
- Pint, B. A. (2012). High Temperature and Pressure Steam-H₂ Interaction with Candidate Advanced LWR Fuel Claddings. Rapport technique, Oak Ridge National Laboratory (ORNL); Shared Research Equipment Collaborative Research Center, ORNL/TM-2012/254.
- Pint, B. A. (2017). Performance of FeCrAl for accident-tolerant fuel cladding in high-temperature steam. *Corrosion Reviews*, 35(3), 167–175.
- Pint, B. A., Terrani, K. A., Yamamoto, Y., and Snead, L. L. (2015). Material selection for accident tolerant fuel cladding. *Metallurgical and Materials Transactions E*, 2(3), 190–196.
- Pint, B. A. and Unocic, K. A. (2017). Steam Oxidation Evaluation of Fe–Cr Alloys for Accident Tolerant Nuclear Fuel Cladding. *Oxidation of Metals*, 87(3-4), 515–526.
- Piro, M., Banfield, J., Clarno, K., Simunovic, S., Besmann, T., Lewis, B., and Thompson, W. (2013). Coupled thermochemical, isotopic evolution and heat transfer simulations in highly irradiated UO₂ nuclear fuel. *Journal of Nuclear Materials*, 441(1), 240–251.
- Polman, E., Fransen, T., and Gellings, P. (1989). Oxidation kinetics of chromium and morphological phenomena. *Oxidation of metals*, 32(5-6), 433–447.
- Pomerance, H. (1948). *Thermal neutron absorption cross sections for separated isotopes*. Atomic Energy Commission, Oak Ridge, TN, USA.
- Pomerance, H. (1952). Thermal Neutron Capture Cross Sections. *Phys. Rev.*, 88, 412–413.
- Powers, D. and Meyer, R. (1980). Cladding swelling and rupture models for LOCA analysis. Rapport technique, Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC (USA). Div. of Systems Safety, NUREG–0630.
- Powers, J. J. and Wirth, B. D. (2010). A review of TRISO fuel performance models. *Journal of Nuclear Materials*, 405(1), 74–82.
- Przybylski, K., Garratt-Reed, A., and Yurek, G. J. (1988). Grain boundary segregation of yttrium in chromia scales. *Journal of the Electrochemical Society*, 135(2), 509–517.
- Rae, H. (1997). *Canada Enters the Nuclear Age : a technical history of Atomic Energy of Canada Limited as seen from its research laboratories*, chapitre CANDU and its Evolution. [Hurst \(1997\)](#).
- Rebak, R. B. and Kim, Y.-J. (2016). Hydrogen diffusion in FeCrAl alloys for light water reactors cladding applications. *ASME 2016 Pressure Vessels and Piping Conference, July 17-21*. American Society of Mechanical Engineers, Vancouver, BC, Canada.

- Rebak, R. B., Terrani, K. A., Gassmann, W. P., Williams, J. B., and Ledford, K. L. (2017). Improving nuclear power plant safety with FeCrAl alloy fuel cladding. *MRS Advances*, 2(21-22), 1217–1224.
- Reuge, N. (2002). *Modélisation globale de l'infiltration chimique en phase vapeur (CVI) et étude de la chimie du dépôt de pyrocarbone en CVD/CVI*. Thèse de doctorat, Université Sciences et Technologies-Bordeaux I.
- Rickover, H. (1975). The Decision to Use Zirconium in Nuclear Reactors. *TID-26740. William J. Kroll Medal, Presentation, Denver, Colorado, USA, March 21*.
- Rivera, J. and Meyer, J. (1980). Stainless Steel Clad for Light Water Reactor Fuels. MIT-Energy Laboratory (MIT-EL) Report No. 80-021. *Cambridge, MA*.
- Robb, K. R. (2015). Analysis of the FeCrAl accident tolerant fuel concept benefits during BWR station blackout accidents. *16th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermalhydraulics, August 30-September 4*. Chicago, IL, USA.
- Robb, K. R., McMurray, J. W., and Terrani, K. A. (2016). Severe Accident Analysis of BWR Core Fueled with UO₂/FeCrAl with Updated Materials and Melt Properties from Experiments. Rapport technique, Oak Ridge National Laboratory (ORNL), Oak Ridge, TN, ORNL/TM-2016/237.
- Rogovin, M. (1980). *Three Mile Island : A report to the commissioners and to the public*, vol. 2. Nuclear Regulatory Commission, Special Inquiry Group, Rockville, Maryland, USA.
- Rondinella, V. and Wiss, T. (2010). The high burn-up structure in nuclear fuel. *Materials today*, 13(12), 24–32.
- Rouben, B. (1984). *Le CANDU : étude du coeur et gestion du combustible*. L'Énergie Atomique du Canada, Limitée, CANDU Operations, Mississauga, ON, Canada.
- Rouben, B. (1995). Overview of current RFSP-code capabilities for CANDU core analysis. *Transactions of the American Nuclear Society*, 72, 339–440.
- Rouben, B. (1997). Fuel Management in CANDU. Presentation at Chulalongkorn University Bangkok, Thailand, December 1997. <https://bit.ly/2IMe22T>. Online; accessed 10 January 2018.
- Rouben, B. (2002). RFSP-IST, the industry standard tool computer program for CANDU reactor core design and analysis. *The 13th Pacific Basin Nuclear Conference, October 21-25, 2002*. Shenzhen, China.
- Rouben, B. (2003). CANDU fuel management, Presentation at McMaster University (10 November). <https://goo.gl/e3fUtw>. Online; accessed 23 May 2017.

- Rouben, B. (2014). *The Essential CANDU, A Textbook on the CANDU Nuclear Power Plant Technology*, chapitre CANDU-In-Core Fuel Management. [Garland \(2014\)](#).
- Roy, R., Marleau, G., Tajmouati, J., and Rozon, D. (1994). Modelling of CANDU reactivity control devices with the lattice code DRAGON. *Annals of Nuclear Energy*, 21(2), 115–132.
- Rozon, D. (1998). *Introduction to Nuclear Reactor Kinetics*. Polytechnic International Press, Montreal, QC, Canada.
- Rozon, D. and Shen, W. (2001). A parametric study of the DUPIC fuel cycle to reflect pressurized water reactor fuel management strategy. *Nuclear Science and Engineering*, 138(1), 1–25.
- Sabioni, A. C. S., Huntz, A. M., Philibert, J., Lesage, B., and Monty, C. (1992). Relation between the oxidation growth rate of chromia scales and self-diffusion in Cr₂O₃. *Journal of materials science*, 27(17), 4782–4790.
- Sagat, S., Sills, H. E., and Walsworth, J. A. (1984). Deformation and failure of zircaloy fuel sheaths under LOCA conditions. *Zirconium in the Nuclear Industry*, ASTM International, West Conshohocken, PA, USA.
- Sakamoto, K., Hirai, M., Ukai, S., Kimura, A., Yamaji, A., Kusagaya, K., Kondo, T., and Yamashita, S. (2017). Overview of japanese development of accident tolerant FeCrAl-ODS fuel claddings for BWRs. *Water Reactor Fuel Performance Meeting, September 10-14*. Jeju Island, Korea.
- Sakamoto, K., Ouchi, A., Suzuki, A., Higuchi, T., Hirai, M., Oono, N., and Ukai, S. (2016). Development of Ce-type FeCrAl-ODS ferritic steel to accident tolerant fuel for BWRs. *Proc Top Fuel 2016, Boise, ID, USA*, 673–680.
- Sari, C., Walker, C., and Schumacher, G. (1979). Solubility and migration of fission product barium in oxide fuel. *Journal of Nuclear Materials*, 79(1), 255–259.
- Saurwein, J., Holzgraf, J., Miller, C., Myers, B., and Wallroth, C. (1982). Final Report on the Peach Bottom Test Element Program. *General Atomic Company, Report GA-A, 15999*.
- Sawatzky, A. (1960). The diffusion and solubility of hydrogen in the alpha phase of Zircaloy-2. *Journal of Nuclear Materials*, 2(1), 62–68.
- Sawatzky, A. and Ells, C. (2000). Understanding hydrogen in zirconium. *Zirconium in the Nuclear Industry : Twelfth International Symposium, June 15-18*. Toronto, ON, Canada.
- Sawatzky, A., Ledoux, G., Tough, R., and Cann, C. (1982). Hydrogen diffusion in zirconium-niobium alloys. *Proceedings of the Miami International Symposium on Metal-Hydrogen Systems, April 13-15*. Elsevier, Miami Beach, Florida, USA, 109–120.

- Schneider, B., Guette, A., Naslain, R., Cataldi, M., and Costecalde, A. (1998). A theoretical and experimental approach to the active-to-passive transition in the oxidation of silicon carbide : experiments at high temperatures and low total pressures. *Journal of Materials Science*, 33(2), 535–547.
- Shanes, F., Olive, C., Cheng, I., Banica, C., Newman, C., and Nainer, O. (2006). Simulation of the Point Lepreau core-follow history with SORO. *Nuclear energy : a world of service to humanity 27th annual conference of the Canadian Nuclear Society and 30th Canadian Nuclear Society/Canadian Nuclear Association student conference, June 11-14*. Canadian Nuclear Society, Toronto, ON, Canada.
- Shapiro, Z. and Moffette, T. (1957). Hydrogen flammability data and application to PWR loss-of-coolant accident. Rapport technique, Westinghouse Electric Corp., Pittsburgh, PA (United States). Bettis Plant, WAPD-SC-545.
- Shen, J., Zhou, L., Li, M., Peng, X., and Li, T. (1992). Effect of Superficially Applied Ceria On High Temperature Oxidation Behavior Of Fe25Cr Alloy. *Corrosion Science and Protection Technology*, 4, 011.
- Shen, W. and Schwanke, P. (2012). Evolution of RFSP 3.5 for CANDU Analysis. *Proceedings of the 33rd Annual Canadian Nuclear Society Conference 2012, June 10-13*. Saskatoon, Canada.
- Shibata, H., Ukai, S., Oono, N. H., Sakamoto, K., and Hirai, M. (2018). Development of accident tolerant FeCrAl-ODS steels utilizing Ce-oxide particles dispersion. *Journal of Nuclear Materials*, 502, 228–235.
- Shishov, V. (2012). The evolution of microstructure and deformation stability in Zr-Nb-(Sn, Fe) alloys under neutron irradiation. *Zirconium in the Nuclear Industry : 16th International Symposium, May 9-13*. ASTM International, Chengdu, Sichuan Province, China.
- Singhal, S. C. (1976). Thermodynamic analysis of the high-temperature stability of silicon nitride and silicon carbide. *Ceramurgia International*, 2(3), 123–130.
- Snead, L. L., Nozawa, T., Katoh, Y., Byun, T.-S., Kondo, S., and Petti, D. A. (2007). Handbook of SiC properties for fuel performance modeling. *Journal of nuclear materials*, 371(1-3), 329–377.
- Snead, M. A., Katoh, Y., Koyanagi, T., and Singh, G. P. (2017). *SiC/SiC Cladding Materials Properties Handbook*. Oak Ridge, TN, USA.
- Sowder, A. (2012). International Collaboration for Development of Accident Resistant Light Water Reactor Fuel. *OECD/NEA Workshop on Accident Tolerant Fuels of LWRs, December 10-12*. Issy-les-Moulineaux, France.

- St-Aubin, E. (2013). *Ajustement du rechargement et des mécanismes de réactivité des réacteurs CANDU pour les cycles de combustible avancés*. Thèse de doctorat, École Polytechnique de Montréal.
- St-Aubin, E. and Marleau, G. (2015a). CANDU-6 fuel optimization for advanced cycles. *Nuclear Engineering and Design*, 293, 371–384.
- St-Aubin, E. and Marleau, G. (2015b). CANDU-6 reactivity devices optimization for advanced fuel cycles - Part I : Adjuster rods optimization. *Nuclear Engineering and Design*.
- St-Aubin, E. and Marleau, G. (2015c). Optimized CANDU-6 cell and reactivity device supercell models for advanced fuels reactor database generation. *Annals of Nuclear Energy*, 85, 331–336.
- Steinbrück, M., Große, M., Sepold, L., and Stuckert, J. (2010). Synopsis and outcome of the QUENCH experimental program. *Nuclear Engineering and Design*, 240(7), 1714–1727.
- Steinbrück, M., Vér, N., and Große, M. (2011). Oxidation of Advanced Zirconium Cladding Alloys in Steam at Temperatures in the Range of 600–1200°C. *Oxidation of Metals*, 76(3), 215–232.
- Strasser, A., Santucci, J., Lindquist, K., Yario, W., Stern, G., Goldstein, L., and Joseph, L. (1982). An Evaluation of Stainless Steel Cladding for Use in Current Design LWRs. *Canadian Nuclear Society, Toronto, Canada, EPRI Report No. NP-2642*.
- Stringer, J. (1966). The effect of alloying on oxidation : Quantitative treatments. *Metallurgical Reviews*, 11(1), 113–128.
- Stringer, J. (1989). The reactive element effect in high-temperature corrosion. *Materials Science and Engineering : A*, 120, 129–137.
- Strumpell, J. (2012). Enhanced Accident Tolerant Fuel (EATF). *OECD/NEA Workshop on Accident Tolerant Fuels of LWRs, December 10-12*. Issy-les-Moulineaux, France.
- Subramanian, R., Sircar, S., and Mazumder, J. (1991). Laser cladding of zirconium on magnesium for improved corrosion properties. *Journal of Materials science*, 26(4), 951–956.
- Sugiyama, T., Umeda, M., Fuketa, T., Sasajima, H., Udagawa, Y., and Nagase, F. (2009). Failure of high burnup fuels under reactivity-initiated accident conditions. *Annals of Nuclear Energy*, 36(3), 380–385. PHYSOR 2008.
- Swainson, I. and Dove, M. (1995). On the thermal expansion of β -cristobalite. *Physics and Chemistry of Minerals*, 22(1), 61–65.
- Talebi, F., Marleau, G., and Koclas, J. (2006). A model for coolant void reactivity evaluation in assemblies of CANDU cells. *Annals of Nuclear Energy*, 33(11-12), 975–983.

- Tedmon, C. (1966). The effect of oxide volatilization on the oxidation kinetics of Cr and Fe-Cr alloys. *Journal of the Electrochemical Society*, 113(8), 766–768.
- Terrani, K. (2018). Accident tolerant fuel cladding development : Promise, status, and challenges. *Journal of Nuclear Materials*, 501, 13–30.
- Terrani, K. A., Keiser, J. R., Brady, M. P., Cheng, T., Silva, G., Pint, B. A., and Snead, L. L. (2012a). High temperature oxidation of silicon carbide and advanced iron-based alloys in steam-hydrogen environments. TopFuel 2012, September 2-6, Manchester, United Kingdom.
- Terrani, K. A., Parish, C. M., Shin, D., and Pint, B. A. (2013). Protection of zirconium by alumina-and chromia-forming iron alloys under high-temperature steam exposure. *Journal of Nuclear Materials*, 438(1-3), 64–71.
- Terrani, K. A., Pint, B. A., Parish, C. M., Silva, C. M., Snead, L. L., and Katoh, Y. (2014a). Silicon carbide oxidation in steam up to 2 MPa. *Journal of the American Ceramic Society*, 97(8), 2331–2352.
- Terrani, K. A., Snead, L. L., and Gehin, J. C. (2012b). Microencapsulated fuel technology for commercial light water and advanced reactor application. *Journal of Nuclear Materials*, 427(1-3), 209–224.
- Terrani, K. A., Wang, D., Ott, L. J., and Montgomery, R. O. (2014b). The effect of fuel thermal conductivity on the behavior of LWR cores during loss-of-coolant accidents. *Journal of Nuclear Materials*, 448(1), 512–519.
- Terrani, K. A., Zinkle, S. J., and Snead, L. L. (2014c). Advanced oxidation-resistant iron-based alloys for LWR fuel cladding. *Journal of Nuclear Materials*, 448(1), 420–435.
- Thomas, D. E., Goldman, K. M., Gordon, R. B., and Johnson, W. A. (1956). Zirconium alloys. US Patent 2,772,964.
- Tissot, O., Pareige, C., Meslin, E., Decamps, B., and Henry, J. (2016). Kinetics of α' precipitation in an electron-irradiated Fe15Cr alloy. *Scripta Materialia*, 122, 31–35.
- Todreas, N. E. and Kazimi, M. S. (2012). *Nuclear systems : thermal hydraulic fundamentals*, vol. 1. CRC Press, Taylor & Francis Group, Parkway, NW, USA.
- Tortorelli, P. (1993). Mechanical properties of chromia scales. *Le Journal de Physique IV*, 3(C9), 943–949.
- Toth, L., Malinauskas, A., Eidam, G., and Burton, H. (1986). *The Three Mile Island accident : diagnosis and prognosis*. ACS Publications, Washington, DC, USA.
- Unocic, K. A., Yamamoto, Y., and Pint, B. A. (2017). Effect of Al and Cr content on air and steam oxidation of FeCrAl alloys and commercial APMT alloy. *Oxidation of Metals*, 87(3-4), 431–441.

- Urbanic, V. and Heidrick, T. (1978). High-temperature oxidation of Zircaloy-2 and Zircaloy-4 in steam. *Journal of nuclear materials*, 75(2), 251–261.
- U.S. Atomic Energy Commission (1973). Acceptance Criteria for Emergency Core Cooling Systems for Light Water Cooled Nuclear Power Reactors. Rapport technique, USAEC RM-50-1.
- US Nuclear Regulatory Commission (1978). Anticipated transients without scram for light water reactors. *NUREG-0460, Vols. I and II*, 101.
- US Senate (2011). Energy And Water Development Appropriations Bill, 2012. Rapport technique, 112th US Congress, Report 112-75.
- Ushakov, S., Burakov, B., Shabalev, S., and Anderson, E. (1996). Interaction of UO₂ and Zircaloy During the Chernobyl Accident. *MRS Online Proceedings Library Archive*, 465.
- Uwaba, T., Ito, M., and Maeda, K. (2011). Diametral strain of fast reactor MOX fuel pins with austenitic stainless steel cladding irradiated to high burnup. *Journal of Nuclear Materials*, 416(3), 350–357.
- Van Nieuwenhove, R., Andersson, V., Balak, J., and Oberländer, B. (2018). In-Pile Testing of CrN, TiAlN, and AlCrN Coatings on Zircaloy Cladding in the Halden Reactor. *Zirconium in the Nuclear Industry : 18th International Symposium, May 15-19*. ASTM International, Hilton Head, SC, USA.
- Varin, E. and Marleau, G. (2006). CANDU reactor core simulations using fully coupled DRAGON and DONJON calculations. *Annals of Nuclear Energy*, 33(8), 682–691.
- Varin, E., Roy, R., Baril, R., and Hotte, G. (2004). CANDU-6 operation post-simulations using the reactor physics codes DRAGON/DONJON. *Annals of Nuclear Energy*, 31(18), 2139–2155.
- Vaughn, W. L. and Maahs, H. G. (1990). Active-to-Passive Transition in the Oxidation of Silicon Carbide and Silicon Nitride in Air. *Journal of the American Ceramic Society*, 73(6), 1540–1543.
- Videm, K. (1972). Properties of zirconium base cladding materials-corrosion and hydrogen pickup. *Nuclear Engineering and Design*, 21(2), 200–211.
- Waltar, A. E. and Reynolds, A. B. (1981). *Fast breeder reactors*. Pergamon international library of science, technology, engineering and social studies. Pergamon Press.
- Walters, L. C., Seidel, B., and Kittel, J. H. (1984). Performance of metallic fuels and blankets in liquid-metal fast breeder reactors. *Nuclear Technology*, 65(2), 179–231.
- Weidenbaum, B., Hoyt, E., Zimmerman, D., Cummings, W., and Antony, K. (1962). Properties of some high temperature control materials. *Materials and fuels for high temperature nuclear energy applications*, (ed. T. Simnad and LR Zumawalt), 315–343.

- Whitlock, J. (1995). *Reduction of the Coolant Void Reactivity Effect in a CANDU Lattice Cell*. Thèse de doctorat, McMaster University.
- Whitlock, J., Garland, W., and Milgram, M. (1995). Effects contributing to positive coolant void reactivity in CANDU. *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 72, 329.
- Whittle, D. and Stringer, J. (1980). Improvements in high temperature oxidation resistance by additions of reactive elements or oxide dispersions. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, 295(1413), 309–329.
- Wight, A. and Sibley, R. (1977). Fuel Management Design Program. *TDAI-105, AECL Power Projects (1977 August)*.
- Wilson, G. E., Boyack, B., Catton, I., Duffey, R., Griffith, P., Katsma, K., Lellouche, G., Levy, S., Rohatgi, U., Wulff, W., and Zuber, N. (1990). Quantifying reactor safety margins part 2 : Characterization of important contributors to uncertainty. *Nuclear Engineering and Design*, 119(1), 17–31.
- Woddi, T., Charlton, W., and Nelson, P. (2009). *India's Nuclear Fuel Cycle : Unraveling the Impact of the U.S.-India Nuclear Accord*. Synthesis Lectures on Nuclear Technology and Society, Morgan & Claypool Publishers, San Rafael, CA, USA.
- World Nuclear Association (2017). World Nuclear Performance Report 2017. Rapport technique, Report No. 2017/004.
- Wright, I. G. and Barry Dooley, R. (2011). Morphologies of oxide growth and exfoliation in superheater and reheater tubing of steam boiler. *Materials at High Temperatures*, 28(1), 40–57.
- Wright, I. G. and Dooley, R. (2010). A review of the oxidation behaviour of structural alloys in steam. *International Materials Reviews*, 55(3), 129–167.
- Wu, S., Cheng, L., Zhang, L., and Xu, Y. (2006). Oxidation behavior of 2D C/SiC with a multi-layer CVD SiC coating. *Surface and Coatings Technology*, 200(14-15), 4489–4492.
- Yajima, S., Hasegawa, Y., Hayashi, J., and Iimura, M. (1978). Synthesis of continuous silicon carbide fibre with high tensile strength and high young's modulus. *Journal of Materials Science*, 13(12), 2569–2576.
- Yajima, S., Hayashi, J., and Omori, M. (1975). Continuous silicon carbide fiber of high tensile strength. *Chemistry Letters*, 4(9), 931–934.
- Yajima, S., Hayashi, J., Omori, M., and Okamura, K. (1976). Development of a silicon carbide fibre with high tensile strength. *Nature*, 261(5562), 683.
- Yamamoto, Y., Pint, B. A., Terrani, K. A., Field, K. G., Yang, Y., and Snead, L. L. (2015). Development and property evaluation of nuclear grade wrought FeCrAl fuel cladding for light water reactors. *Journal of Nuclear Materials*, 467, 703–716.

- Yano, Y., Tanno, T., Oka, H., Ohtsuka, S., Inoue, T., Kato, S., Furukawa, T., Uwaba, T., Kaito, T., Ukai, S., *et al.* (2017). Ultra-high temperature tensile properties of ODS steel claddings under severe accident conditions. *Journal of Nuclear Materials*, 487, 229–237.
- Yeom, H., Lockhart, C., Mariani, R., Xu, P., Corradini, M., and Sridharan, K. (2018). Evaluation of steam corrosion and water quenching behavior of zirconium-silicide coated LWR fuel claddings. *Journal of Nuclear Materials*, 499, 256–267.
- Yunker, I. and Fratoni, M. (2016). Neutronic evaluation of coating and cladding materials for accident tolerant fuels. *Progress in Nuclear Energy*, 88, 10–18.
- Ziemniak, S. and Hanson, M. (2002). Corrosion behavior of 304 stainless steel in high temperature, hydrogenated water. *Corrosion Science*, 44(10), 2209–2230.
- Zinkle, S., Terrani, K., Gehin, J. C., Ott, L. J., and Snead, L. L. (2014). Accident tolerant fuels for LWRs : A perspective. *Journal of Nuclear Materials*, 448(1), 374–379.

ANNEXE A CARACTÉRISTIQUES DU RÉACTEUR CANDU-6

Tableau A.1 Caractéristiques générales du réacteur CANDU-6.

Caractéristiques	Paramètre	Grandeur/Spécifications
Généralités	Spectre	Thermique
	Type du réacteur	À tubes de force
	Orientation du cœur	Horizontale
	Caloporteur/Modérateur	D ₂ O/D ₂ O
	Écoulement du caloporteur	Bidirectionnel
	Combustible	UO ₂ [nat.]
	Rechargement	En marche
	Pas du réseau	28.575 cm
	Longueur active du cœur	5.944 m
	Rayon du cœur	3.143 m
	Épuisement de déchargement final du combustible	7.5 GW – jour/tonne
	Masse totale du combustible UO ₂ dans le cœur	95 tonnes
	Masse totale d'uranium ^{235,238} U dans le cœur	84 tonnes
	Masse totale d'eau lourde du modérateur	265 tonnes
	Masse totale d'eau lourde du caloporteur	192 tonnes
	Nombre total des canaux	380
	Nombre total des grappes	4560
	Nombre de grappes par canal	12
	Nombre de crayons par grappe	37
	Nombre de pompes primaires	4
Puissance	Débit de chaque pompe	2.228 m ³ /s
	Surface de transfert de chaleur active	~ 3430 m ²
	Effet Xénon à l'équilibre	28 mk
	Puissance de fission totale	2180 MW
	Puissance thermique brute	2061.4 MW
	Puissance électrique nette	665 MW
	Puissance maximale du canal	6.5 MW
	Puissance maximale de la grappe	0.8 MW
	Rendement	32.2%
	Densité de puissance moyenne du cœur	~ 11 MW/m ³
	Densité de chaleur moyenne	~ 600 kW/m ³
	Densité de chaleur maximale	~ 1000 kW/m ³

Tableau A.2 Caractéristiques spécifiques du réacteur CANDU-6.

Caractéristiques	Paramètre	Grandeur/Spécifications
Combustible	Grappe	CANLUB/37 crayons
	Longueur de la grappe	49.5 cm
	Diamètre de la grappe	10.24 cm
	Diamètre du crayon	13.08 mm
	Gainage	Zircaloy-II/Zircaloy-IV
	Masse du combustible/grappe	21.3 kg
	Masse du Zircaloy/grappe	4.2 kg
	Densité de la pastille	10.438 g/cm ³
	Épaisseur de la gaine	0.38 mm
Tube de force	Longueur	6.30 m
	Diamètre intérieur	10.3378 cm
	Épaisseur	4.19 mm
	Matériau	Alliage zirconium-2.5%niobium
Tube de calandre	Longueur totale	10.82 m
	Diamètre intérieur	12.8956 cm
	Épaisseur	4.06 mm
	Matériau	Zircaloy-II
Caloporteur	Température à l'entrée	266.6 °C
	Température à la sortie	312.0 °C
	Pression à l'entrée	11.04 MPa
	Pression à la sortie	10.03 MPa
	Débit massique total	7600 kg/s
	Pureté	99.3 at. %
Modérateur	Température à l'entrée	49 °C
	Température à la sortie	77 °C
	Pureté	99.92 at. %
Calandre	Diamètre	8.09 m
	Longueur hors tout	7.82 mm
	Épaisseur	25.4 mm
Mécanismes de régulation	21 Barres de compensation (SS)	15 mk
	6 Barres liquides (H ₂ O+ ⁴ He)	7.5 mk
	4 Barres solides (^{nat} Cd)	10.5 mk
	Poison dans le modérateur (^{nat} Cd N ₂ O ₆)	À l'injection
Mécanismes d'arrêt	28 Barres d'arrêt (^{nat} Cd)	80 mk
	6 Injecteurs de poison (^{nat} Cd N ₂ O ₆)	600 mk

ANNEXE B RÉSULTATS DE QUELQUES AUTRES CRITÈRES D'ENRICHISSEMENT

Les Figs. B.1 à B.3 présentent le comportement du k_{eff} en fonction du temps de résidence du combustible pour trois stratégies d'enrichissement en ^{235}U autres que celle finalement adoptée. On rappelle qu'un enrichissement n'est introduit que lorsque l'état sous-critique est constaté dès le début du cycle, ce qui est le cas des grappes à base de fer et d'acier inoxydable.

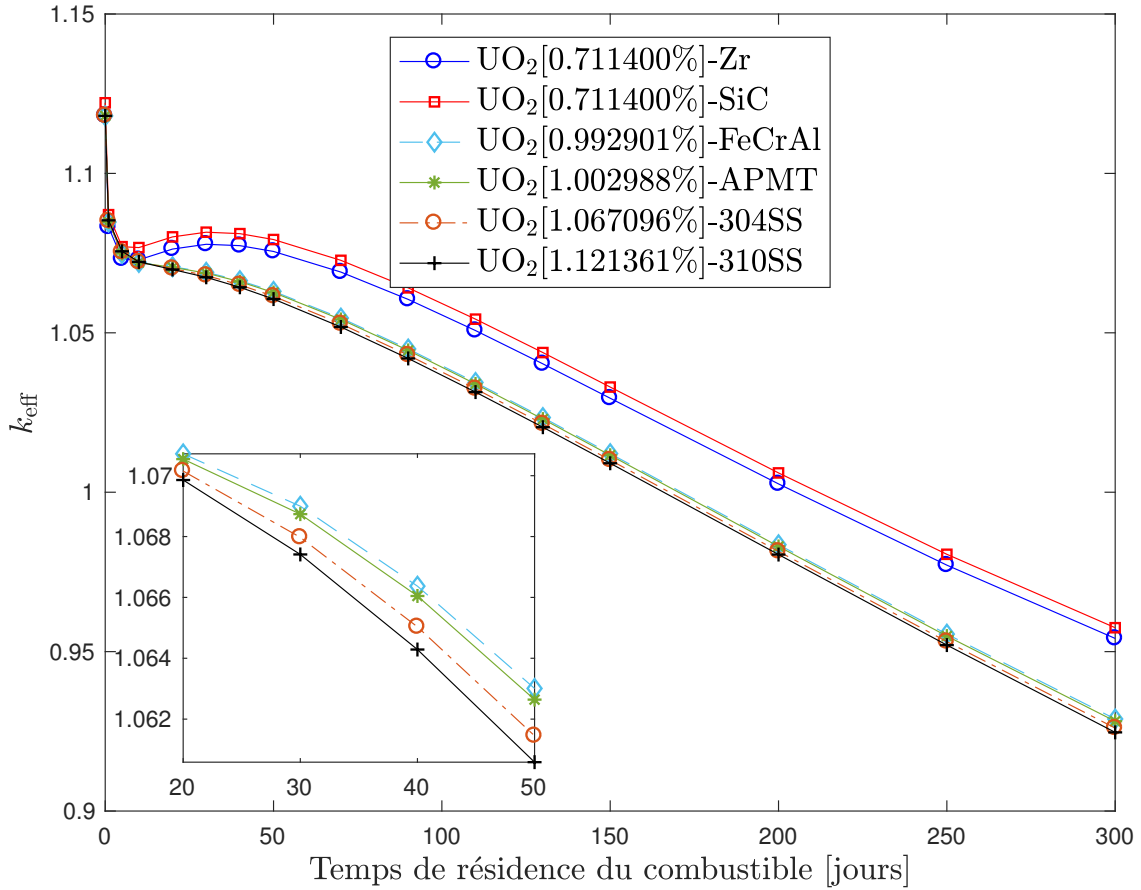


Figure B.1 Facteur de multiplication effectif vs. temps de résidence du combustible pour la grappe standard CANDU-6 pour un critère de même réactivité que le Zircaloy au BOC.

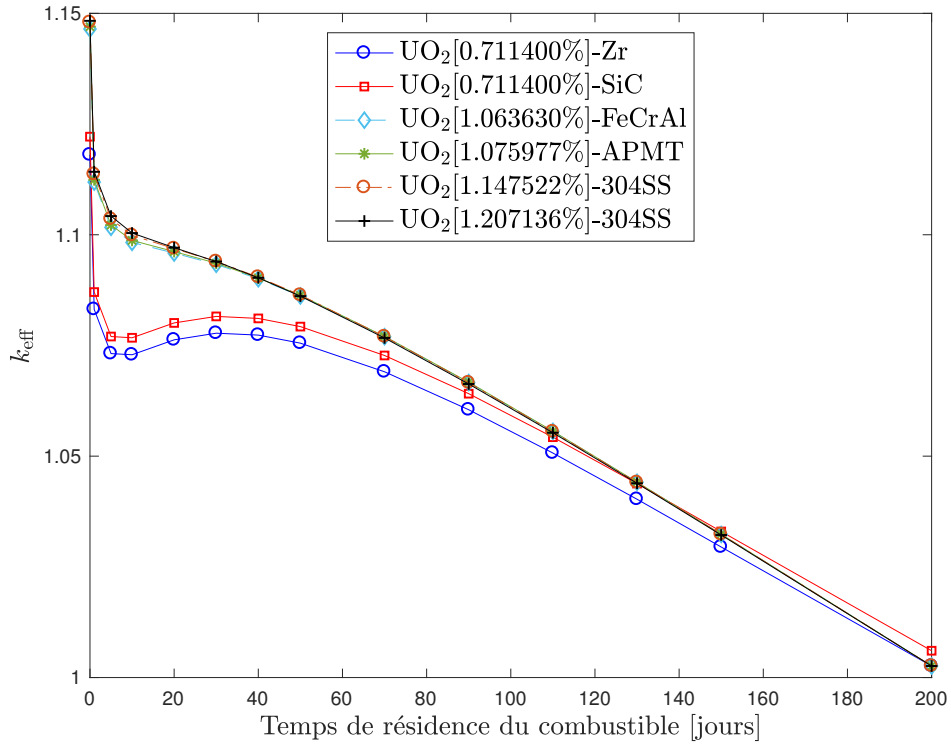


Figure B.2 Facteur de multiplication effectif vs. temps de résidence du combustible pour la grappe standard CANDU-6 pour un critère de même réactivité que le Zircaloy à son jour de basculement à sous-critique.

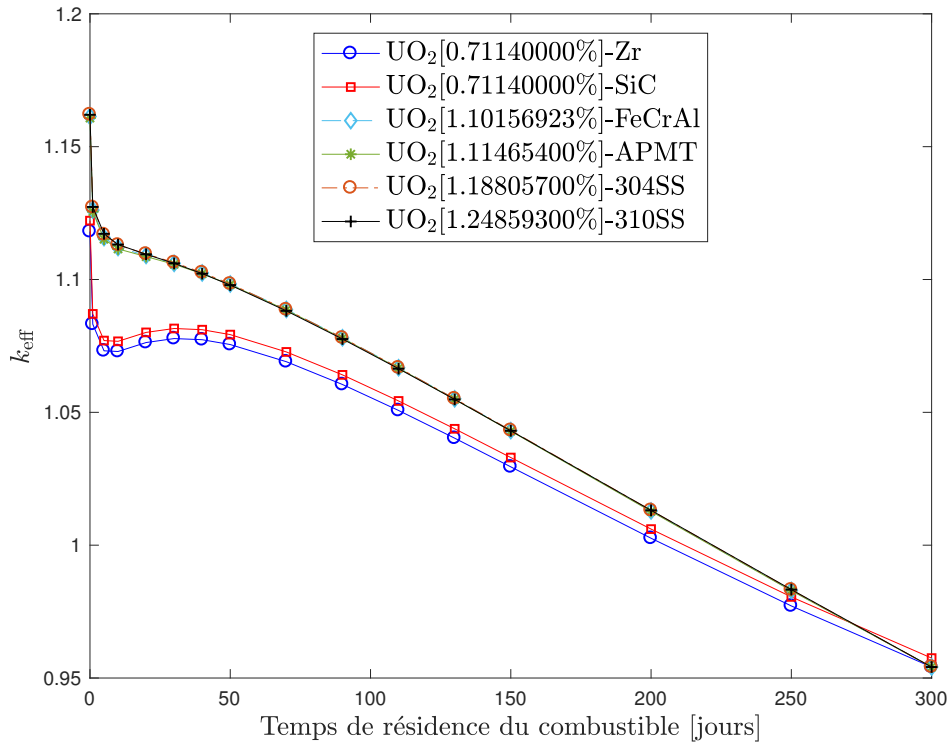


Figure B.3 Facteur de multiplication effectif vs. temps de résidence du combustible pour la grappe standard CANDU-6 pour un critère de même réactivité que le Zircaloy au EOC.

ANNEXE C EFFET DU RAFFINEMENT DES CONDITIONS DE DISCRÉTISATION RADIALE

Les tableaux C.1 à C.9 montrent l'effet d'un raffinement des conditions de discrétisation radiale (SPLITR) au niveau des pastilles pour différentes considérations de mélanges (MIX) possibles.

Tableau C.1 Facteur de multiplication effectif en fonction du temps t pour le critère d'enrichissement adopté (\bar{k}_{eff}) avec les conditions de tracking et de burnup (SPLITR 2, 1 MIX)

t [jours]	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	APMT
0	1.11805	1.12215	1.14111	1.14271	1.14160
1	1.08315	1.08705	1.10678	1.10864	1.10725
5	1.07316	1.07702	1.09661	1.09859	1.09709
10	1.07290	1.07673	1.09332	1.09500	1.09374
20	1.07627	1.08009	1.09110	1.09218	1.09140
30	1.07777	1.08156	1.08871	1.08938	1.08892
40	1.07734	1.08111	1.08555	1.08594	1.08570
50	1.07552	1.07926	1.08176	1.08195	1.08186
70	1.06905	1.07273	1.07271	1.07269	1.07276
90	1.06048	1.06411	1.06248	1.06238	1.06250
110	1.05071	1.05428	1.05152	1.05141	1.05153
130	1.04027	1.04381	1.04012	1.04001	1.04011
150	1.02948	1.03299	1.02843	1.02833	1.02841
200	1.00261	1.00605	0.99891	0.99879	0.99885
250	0.97713	0.98053	0.96984	0.96952	0.96971
300	0.95414	0.95750	0.94203	0.94126	0.94179
\bar{k}_{eff}	1.026239	1.029790	1.026239	1.026239	1.026239

Tableau C.2 Facteur de multiplication effectif en fonction du temps t pour le critère d'enrichissement adopté (\bar{k}_{eff}) avec les conditions de tracking et de burnup (SPLITR 3, 1 MIX)

t [jours]	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	APMT
0	1.11805	1.12216	1.14108	1.14268	1.14157
1	1.08316	1.08706	1.10675	1.10861	1.10722
5	1.07317	1.07702	1.09659	1.09856	1.09706
10	1.07290	1.07674	1.09329	1.09497	1.09371
20	1.07628	1.08009	1.09107	1.09214	1.09137
30	1.07777	1.08157	1.08868	1.08934	1.08889
40	1.07734	1.08111	1.08552	1.08590	1.08567
50	1.07552	1.07926	1.08173	1.08192	1.08183
70	1.06906	1.07274	1.07268	1.07266	1.07273
90	1.06048	1.06411	1.06245	1.06235	1.06247
110	1.05071	1.05429	1.05150	1.05138	1.05150
130	1.04027	1.04381	1.04010	1.03998	1.04008
150	1.02948	1.03299	1.02840	1.02830	1.02838
200	1.00261	1.00605	0.99888	0.99876	0.99882
250	0.97712	0.98053	0.96981	0.96949	0.96968
300	0.95413	0.95750	0.94201	0.94123	0.94176
\bar{k}_{eff}	1.026240	1.029792	1.026213	1.026208	1.026212

Tableau C.3 $|\Delta k_{\text{eff}}|$ [pcm] en fonction du temps t pour la différence entre les conditions (SPLITR 3, 1 MIX) et (SPLITR 2, 1 MIX)

t [jours]	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	APMT
0	0.6	0.8	2.7	3.3	2.8
1	0.5	0.8	2.6	3.2	2.8
5	0.7	0.8	2.6	3.2	2.8
10	0.5	0.8	2.6	3.3	2.8
20	0.5	0.6	2.7	3.3	2.8
30	0.4	0.7	2.6	3.2	2.8
40	0.4	0.4	2.7	3.3	2.8
50	0.3	0.5	2.7	3.2	2.8
70	0.3	0.5	2.7	3.2	2.8
90	0.2	0.4	2.6	3.2	2.8
110	0.1	0.4	2.7	3.2	2.7
130	0.0	0.2	2.6	3.1	2.8
150	0.1	0.1	2.6	3.1	2.7
200	0.1	0.0	2.5	3.1	2.8
250	0.3	0.3	2.8	3.1	2.8
300	0.6	0.4	2.6	3.2	2.7

Tableau C.4 Facteur de multiplication effectif en fonction du temps t pour le critère d'enrichissement adopté (\bar{k}_{eff}) avec les conditions de tracking et de burnup (SPLITR 4, 1 MIX)

t [jours]	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	APMT
0	1.11806	1.12216	1.14107	1.14266	1.14155
1	1.08316	1.08707	1.10673	1.10859	1.10721
5	1.07317	1.07703	1.09657	1.09854	1.09705
10	1.07291	1.07675	1.09328	1.09495	1.09370
20	1.07628	1.08010	1.09106	1.09212	1.09135
30	1.07778	1.08157	1.08866	1.08932	1.08887
40	1.07734	1.08112	1.08551	1.08589	1.08566
50	1.07552	1.07927	1.08171	1.08190	1.08182
70	1.06906	1.07274	1.07266	1.07264	1.07271
90	1.06048	1.06411	1.06244	1.06233	1.06246
110	1.05071	1.05429	1.05148	1.05136	1.05148
130	1.04027	1.04381	1.04008	1.03996	1.04007
150	1.02949	1.03299	1.02839	1.02828	1.02836
200	1.00261	1.00606	0.99887	0.99874	0.99881
250	0.97712	0.98053	0.96979	0.96948	0.96966
300	0.95413	0.95750	0.94199	0.94122	0.94175
\bar{k}_{eff}	1.026241	1.029795	1.026198	1.026190	1.026196

Tableau C.5 $|\Delta k_{\text{eff}}|$ [pcm] en fonction du temps t pour la différence entre les conditions (SPLITR 4, 1 MIX) et (SPLITR 2, 1 MIX)

t [jours]	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	APMT
0	1.0	1.4	4.3	5.4	4.6
1	1.0	1.3	4.3	5.2	4.4
5	1.0	1.3	4.2	5.3	4.5
10	1.0	1.3	4.2	5.3	4.4
20	1.0	1.1	4.3	5.3	4.4
30	0.8	1.1	4.3	5.2	4.4
40	0.7	0.9	4.3	5.3	4.4
50	0.7	0.9	4.3	5.2	4.5
70	0.5	0.9	4.2	5.2	4.5
90	0.5	0.8	4.1	5.2	4.5
110	0.4	0.8	4.2	5.1	4.3
130	0.3	0.6	4.1	4.9	4.3
150	0.4	0.5	4.1	4.9	4.3
200	0.0	0.2	4.0	4.8	4.2
250	0.4	0.3	4.2	4.9	4.2
300	0.7	0.5	4.2	4.9	4.3

Tableau C.6 Facteur de multiplication effectif en fonction du temps t pour le critère d'enrichissement adopté (\bar{k}_{eff}) avec les conditions de tracking et de burnup (SPLITR 4, 4 MIX)

t [jours]	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	APMT
0	1.11806	1.12217	1.14105	1.14263	1.14153
1	1.08317	1.08708	1.10671	1.10856	1.10719
5	1.07318	1.07704	1.09655	1.09851	1.09703
10	1.07291	1.07675	1.09326	1.09492	1.09367
20	1.07629	1.08010	1.09104	1.09210	1.09133
30	1.07778	1.08158	1.08864	1.08930	1.08885
40	1.07735	1.08112	1.08548	1.08586	1.08563
50	1.07552	1.07927	1.08169	1.08187	1.08179
70	1.06905	1.07274	1.07263	1.07261	1.07268
90	1.06047	1.06410	1.06240	1.06229	1.06242
110	1.05070	1.05428	1.05144	1.05131	1.05145
130	1.04025	1.04380	1.04004	1.03991	1.04003
150	1.02947	1.03298	1.02834	1.02823	1.02832
200	1.00259	1.00604	0.99882	0.99869	0.99876
250	0.97711	0.98052	0.96975	0.96943	0.96962
300	0.95412	0.95749	0.94196	0.94117	0.94171
\bar{k}_{eff}	1.026231	1.029785	1.026160	1.026147	1.026157

Tableau C.7 $|\Delta k_{\text{eff}}|$ [pcm] en fonction du temps t pour la différence entre les conditions (SPLITR 4, 4 MIX) et (SPLITR 2, 1 MIX)

t [jours]	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	APMT
0	1.6	2.3	6.4	7.8	6.6
1	1.6	2.1	6.3	7.8	6.6
5	1.6	2.0	6.4	8.0	6.7
10	1.4	1.9	6.4	8.0	6.7
20	1.4	1.7	6.4	7.9	6.7
30	1.1	1.6	6.5	8.0	6.8
40	0.8	1.1	6.7	8.2	6.9
50	0.5	1.0	6.9	8.4	7.2
70	0.2	0.2	7.7	8.8	8.1
90	0.7	0.4	8.2	9.5	8.5
110	1.0	0.5	8.0	9.5	8.2
130	1.4	1.1	8.3	9.8	8.7
150	1.4	0.9	8.6	10.1	8.8
200	1.6	1.5	8.6	10.0	8.9
250	1.5	1.3	8.2	9.4	8.4
300	1.9	1.7	7.5	9.0	8.1

Tableau C.8 Facteur de multiplication effectif en fonction du temps t pour le critère d'enrichissement adopté (\bar{k}_{eff}) avec les conditions de tracking et de burnup (SPLITR 10, 4 MIX)

t [jours]	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	APMT
0	1.11807	1.12218	1.14103	1.14261	1.14152
1	1.08318	1.08708	1.10670	1.10854	1.10717
5	1.07318	1.07704	1.09653	1.09849	1.09701
10	1.07292	1.07676	1.09324	1.09490	1.09366
20	1.07629	1.08011	1.09102	1.09208	1.09132
30	1.07779	1.08158	1.08863	1.08928	1.08884
40	1.07735	1.08112	1.08547	1.08584	1.08562
50	1.07553	1.07927	1.08167	1.08185	1.08178
70	1.06906	1.07274	1.07262	1.07259	1.07267
90	1.06048	1.06411	1.06239	1.06227	1.06241
110	1.05070	1.05429	1.05144	1.05130	1.05144
130	1.04026	1.04380	1.04003	1.03990	1.04002
150	1.02948	1.03298	1.02833	1.02822	1.02831
200	1.00260	1.00605	0.99882	0.99868	0.99875
250	0.97712	0.98052	0.96975	0.96942	0.96962
300	0.95412	0.95749	0.94195	0.94117	0.94171
\bar{k}_{eff}	1.026237	1.029792	1.026152	1.026135	1.026149

Tableau C.9 $|\Delta k_{\text{eff}}|$ [pcm] en fonction du temps t pour la différence entre les conditions (SPLITR 10, 4 MIX) et (SPLITR 2, 1 MIX)

t [jours]	Zr	SiC	FeCrAl	304SS	APMT
0	2.3	2.9	7.8	9.7	8.2
1	2.2	2.8	7.8	9.6	8.1
5	2.1	2.7	7.7	9.7	8.1
10	2.1	2.6	7.7	9.7	8.1
20	2.0	2.3	7.8	9.7	8.1
30	1.7	2.2	7.7	9.7	8.1
40	1.3	1.8	8.0	9.8	8.2
50	1.2	1.6	8.1	10.0	8.4
70	0.4	1.0	8.8	10.3	9.2
90	0.0	0.4	9.1	10.9	9.5
110	0.2	0.2	8.9	10.7	9.2
130	0.7	0.2	9.2	11.1	9.5
150	0.7	0.1	9.4	11.1	9.6
200	0.9	0.7	9.3	10.9	9.6
250	0.9	0.8	8.9	10.2	9.0
300	1.4	1.1	8.0	9.8	8.7

ANNEXE D DURCISSEMENT DU FLUX NEUTRONIQUE AU NIVEAU DE LA GRAPPE

La Fig. D.1 montre le flux neutronique par unité de léthargie, au niveau des pastilles d' UO_2 , pour les 172 groupes d'énergie considérés au MOC. Les Figs. D.2 et D.3 permettent de distinguer un durcissement semblable du flux, respectivement, au 1^{er} et au 300^{ème} jour. Une homogénéisation des sections efficaces a été également faite au niveau des gaines et du modérateur. La Fig. D.4 illustre les mêmes profils de durcissement du flux au niveau de la gaine et du modérateur à trois instants de burnup.

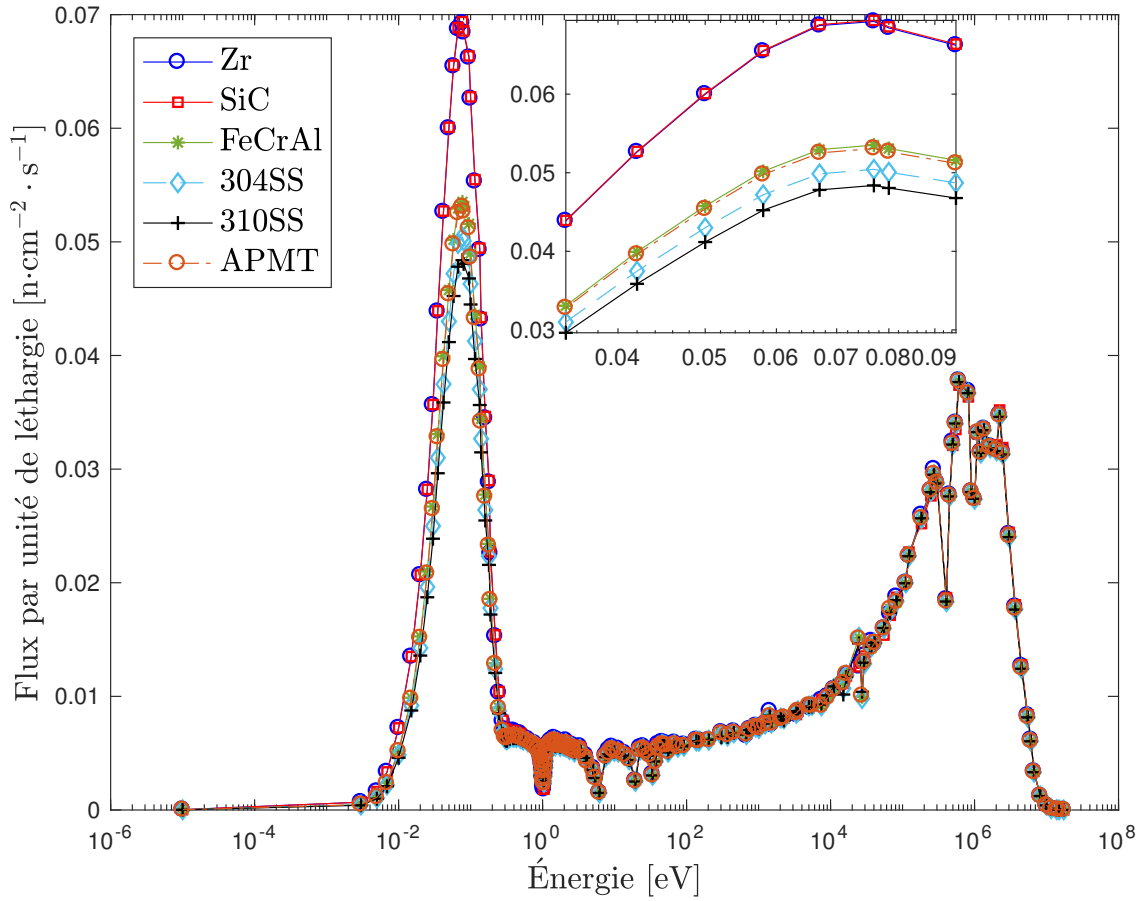


Figure D.1 Flux neutronique par unité de léthargie, au niveau du combustible, au 150^{ème} jour.

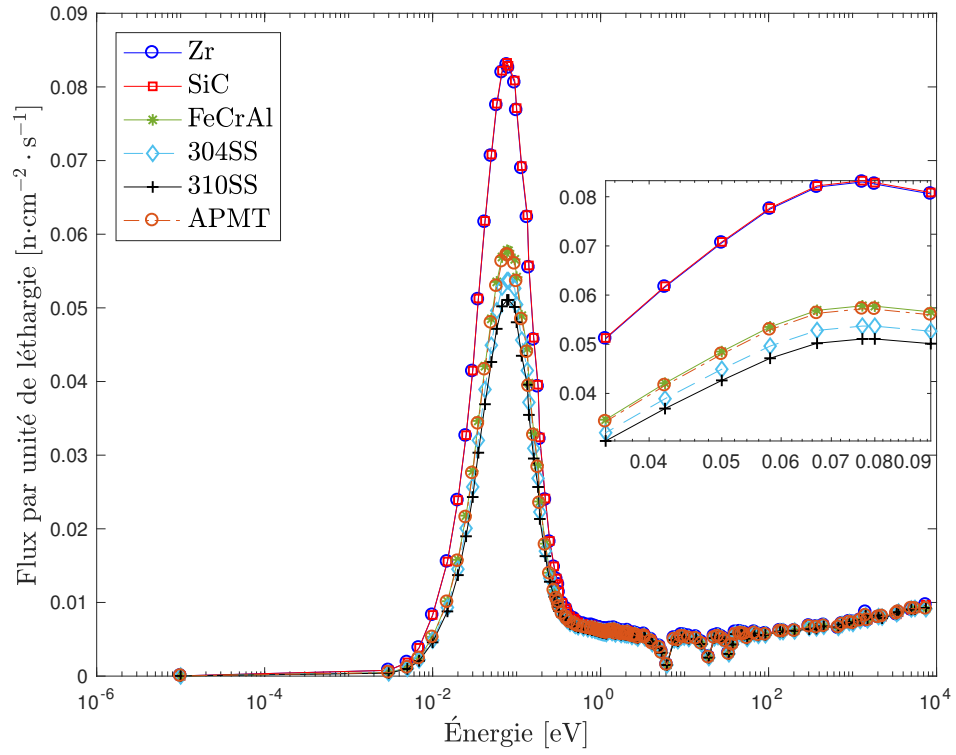


Figure D.2 Flux neutronique par unité de léthargie, au niveau du combustible, au 1^{er} jour.

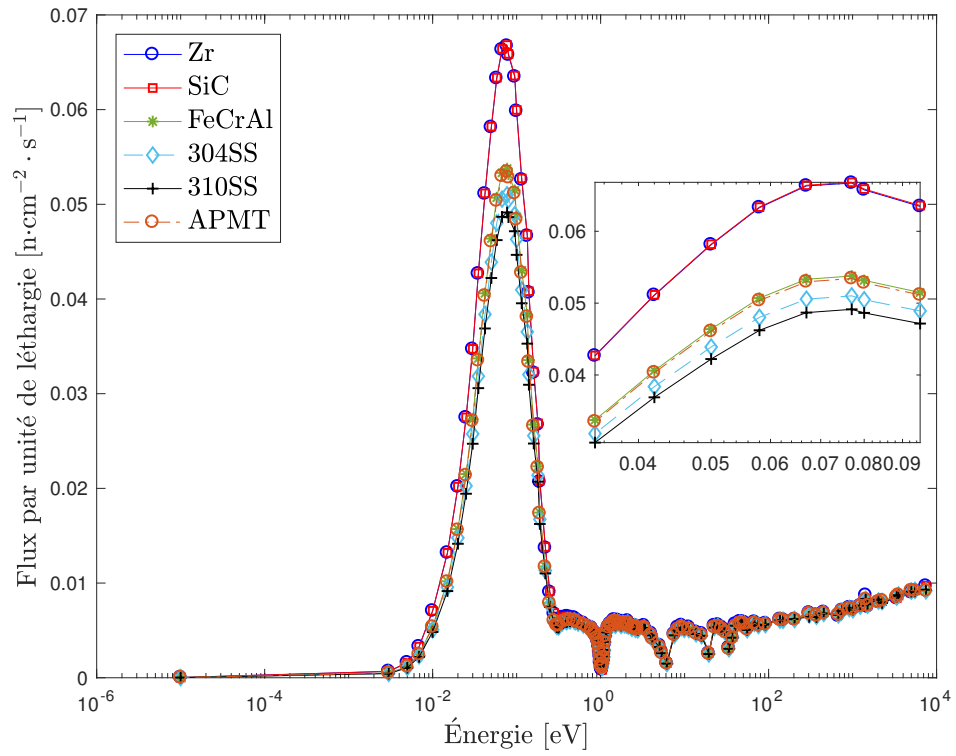


Figure D.3 Flux neutronique par unité de léthargie, au niveau du combustible, au 300^{ème} jour.

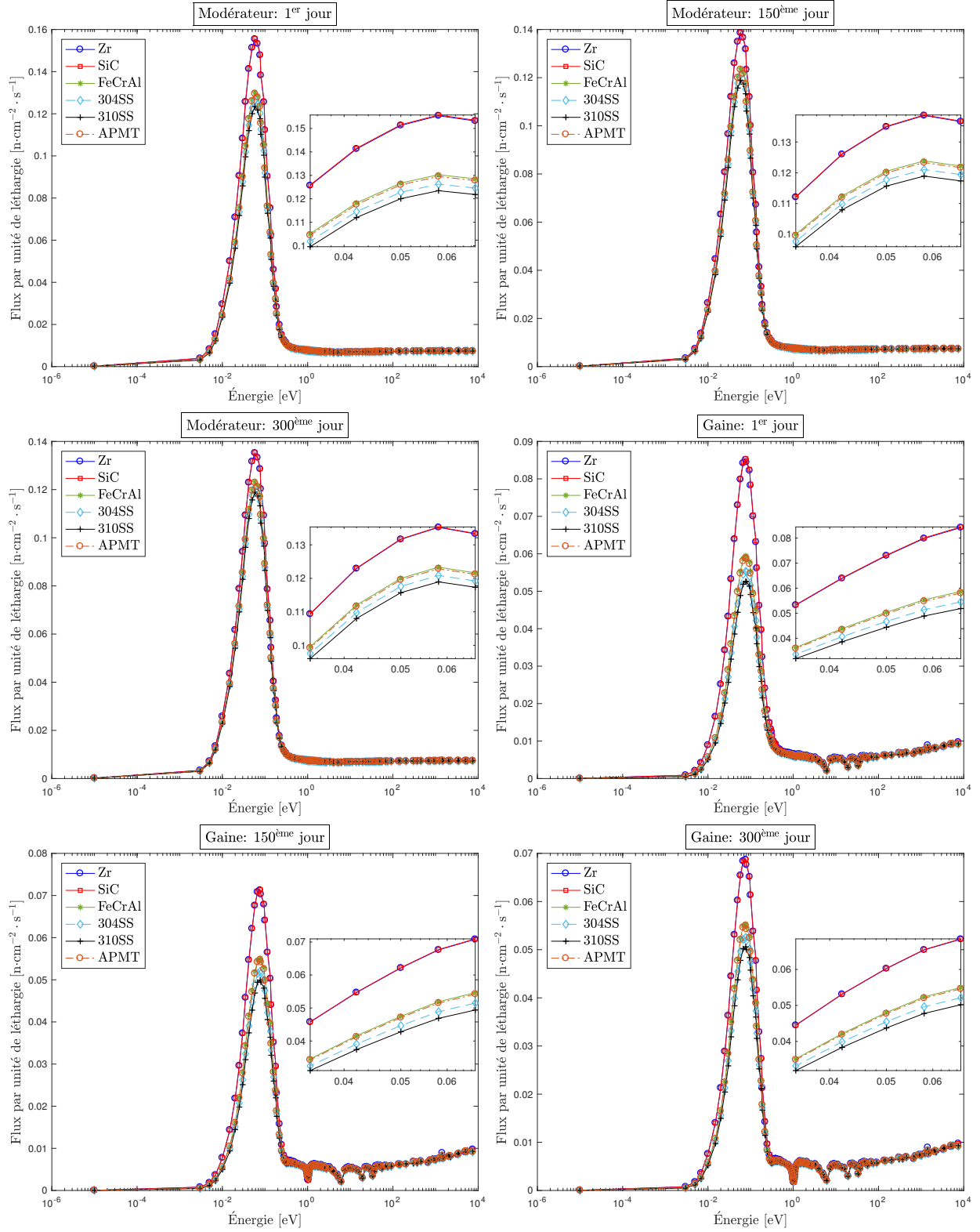


Figure D.4 Flux neutronique par unité de léthargie au niveau du modérateur et de la gaine.

ANNEXE E PROFIL RADIAL DE LA DENSITÉ DE PUISSANCE ET DU TAUX DE FISSION

Les Figs. E.1 à E.3 montrent le profil radial de la densité de puissance, au sein de la pastille, à trois niveaux de burnup. Les Figs. E.4 et E.5 montrent le taux de fission par neutrons thermiques au sein de la pastille, alors que la Fig. E.6 illustre le même type de profil radial pour les groupes épithermiques et rapides. Il importe de rappeler que le taux de fission est calculé suivant :

$$R_f^G = \sum_{g \in G} \nu \Sigma_f^g \phi_{\text{int}}^g. \quad (\text{E.1})$$

Où G représente le groupe thermique ($E_g \geq 0.625 \text{ eV}$), épithermique ($0.625 \text{ eV} < E_g \leq 9.119 \text{ keV}$) ou rapide ($E_g \geq 9.119 \text{ keV}$). ϕ_{int} (cm/s) est le flux intégré sur le volume de la région homogénéisée.

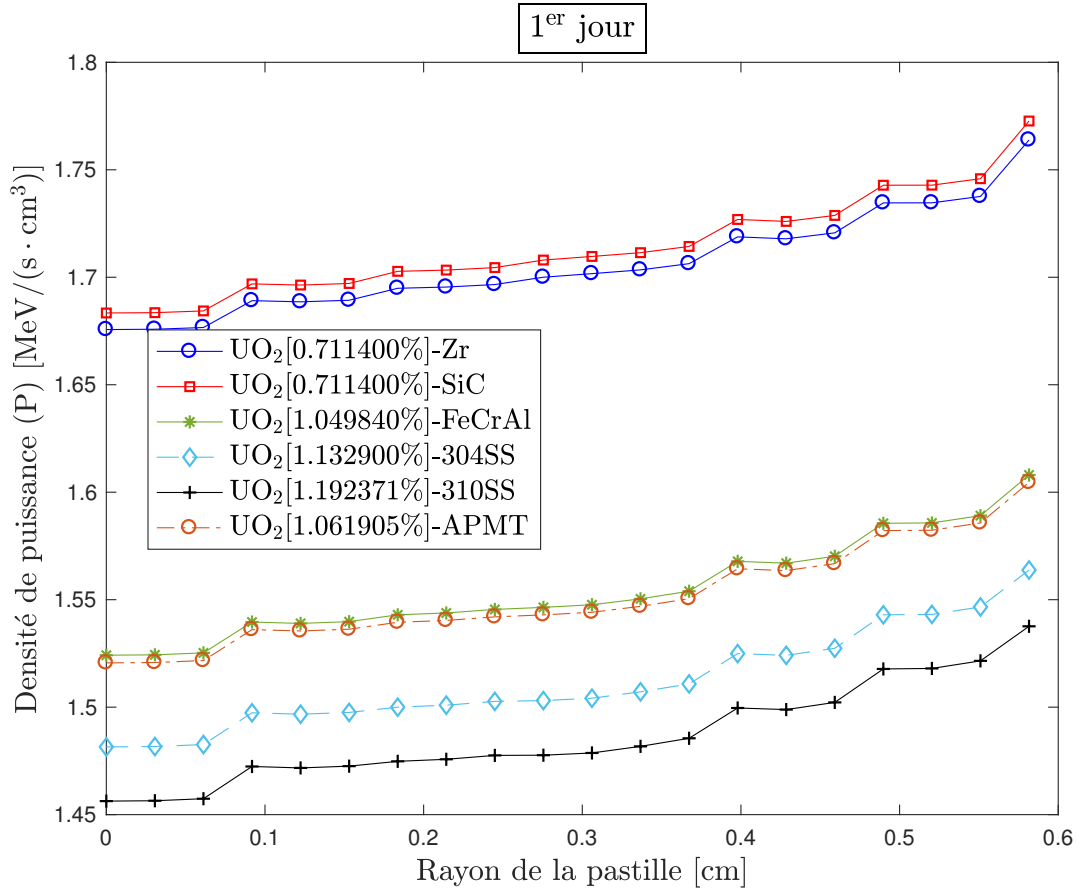
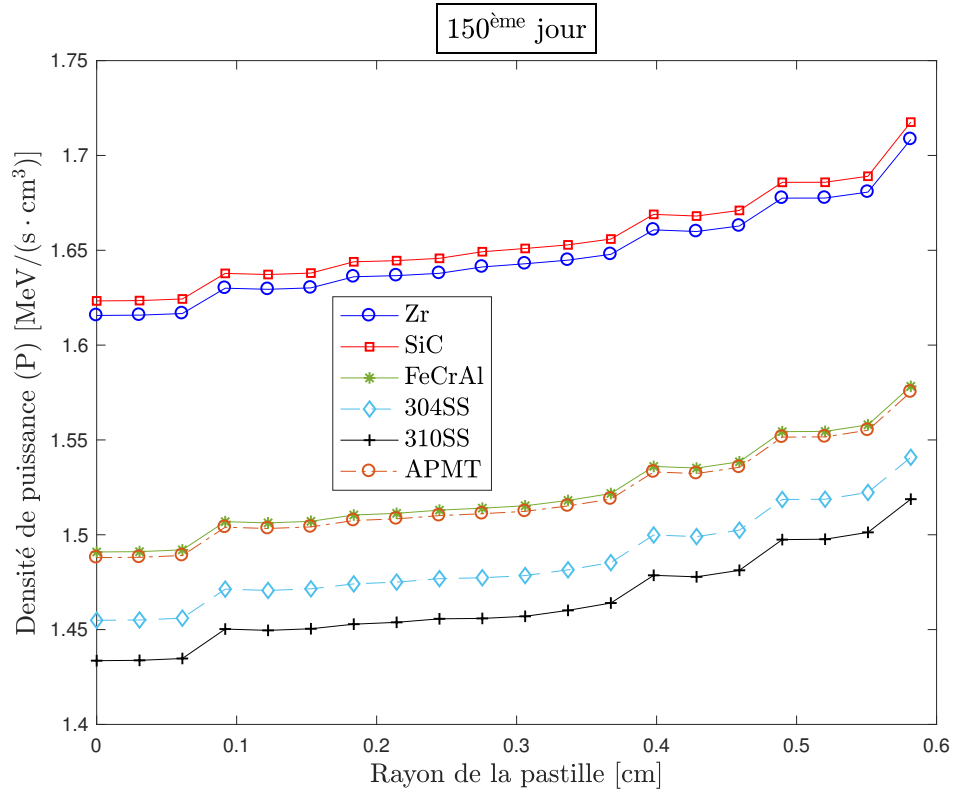
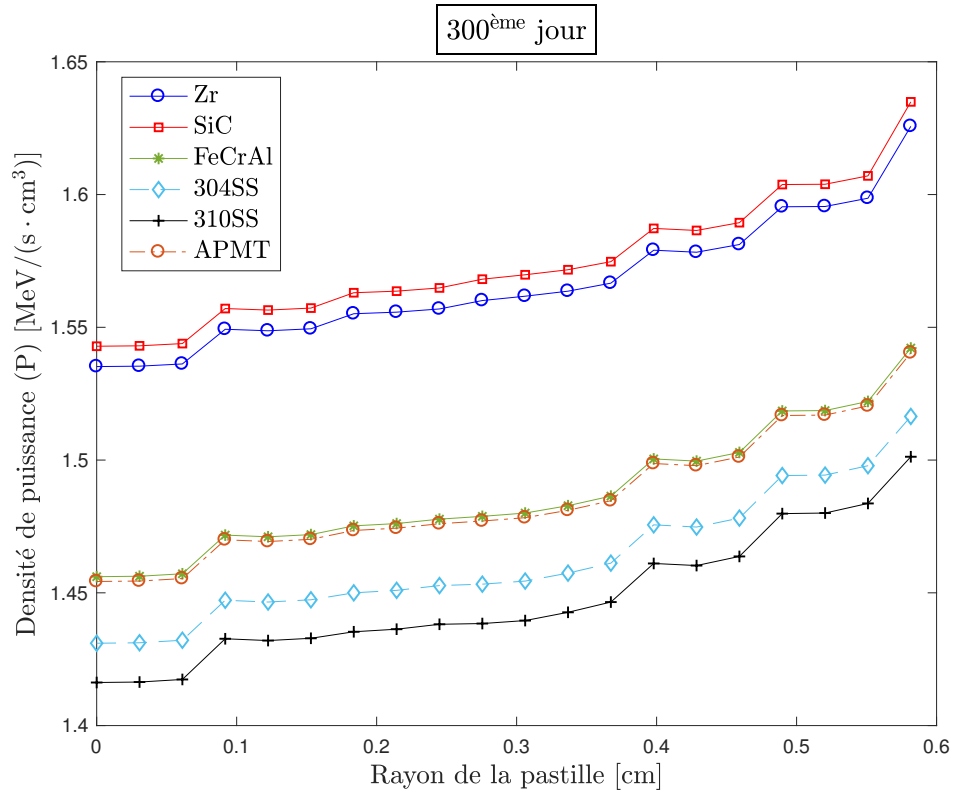
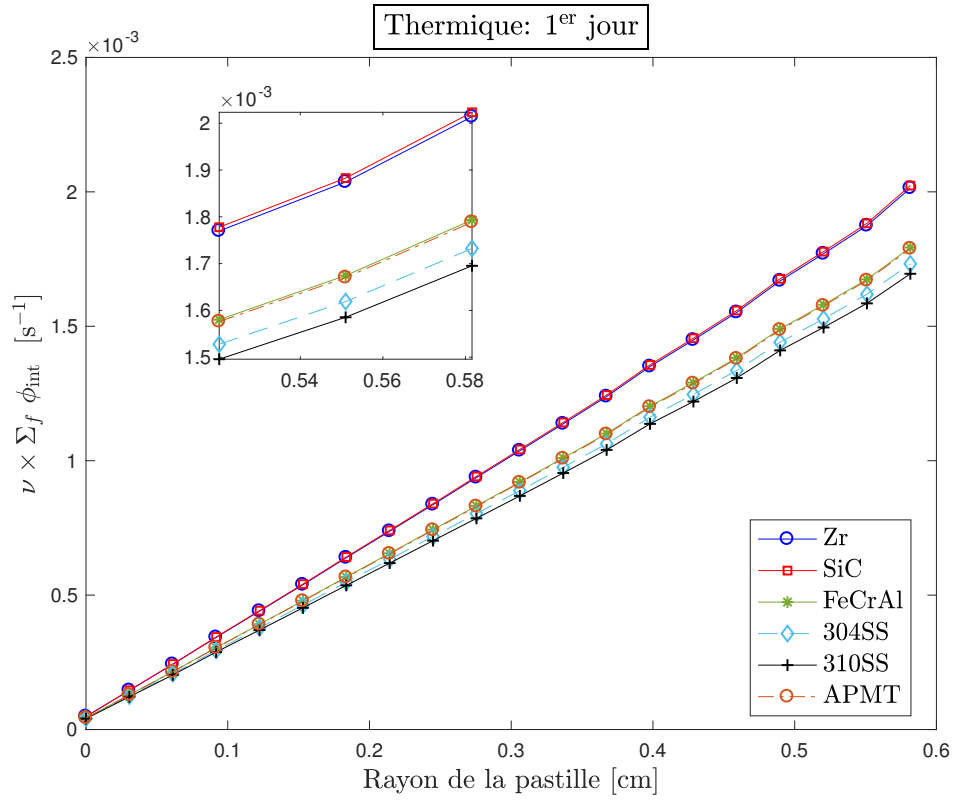
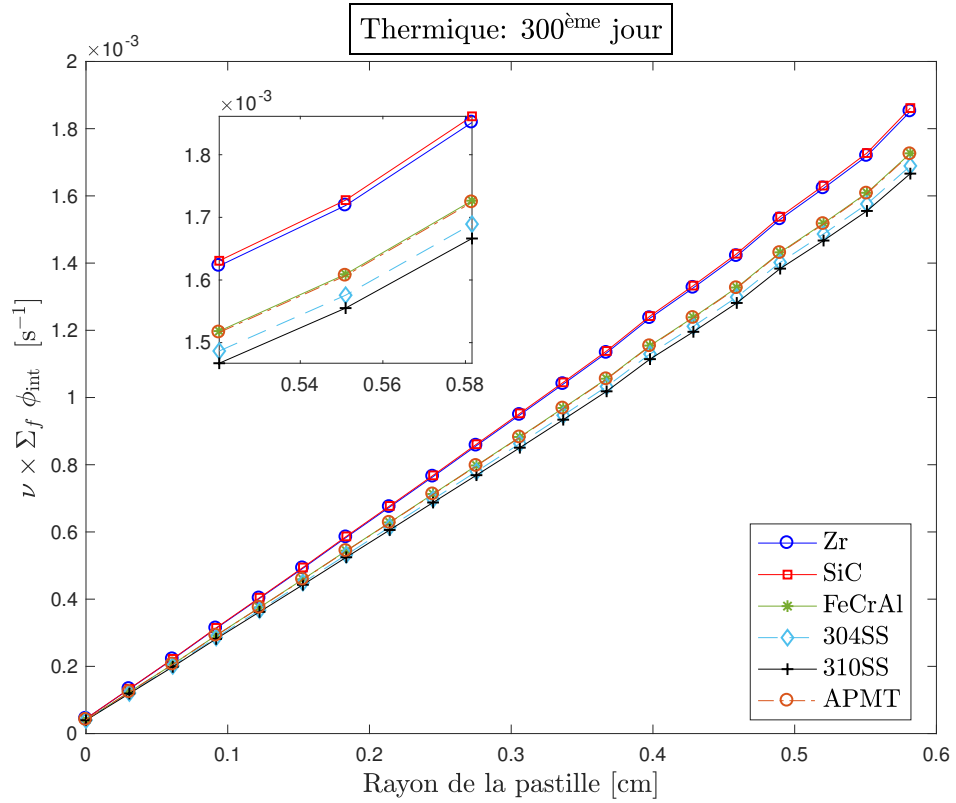


Figure E.1 Profil radial de la densité de puissance au 1^{er} jour.

Figure E.2 Profil radial de la densité de puissance au 150^{ème} jour.Figure E.3 Profil radial de la densité de puissance au 300^{ème} jour.

Figure E.4 Taux de fission par neutrons thermiques au 1^{er} jour.Figure E.5 Taux de fission par neutrons thermiques au 300^{ème} jour.

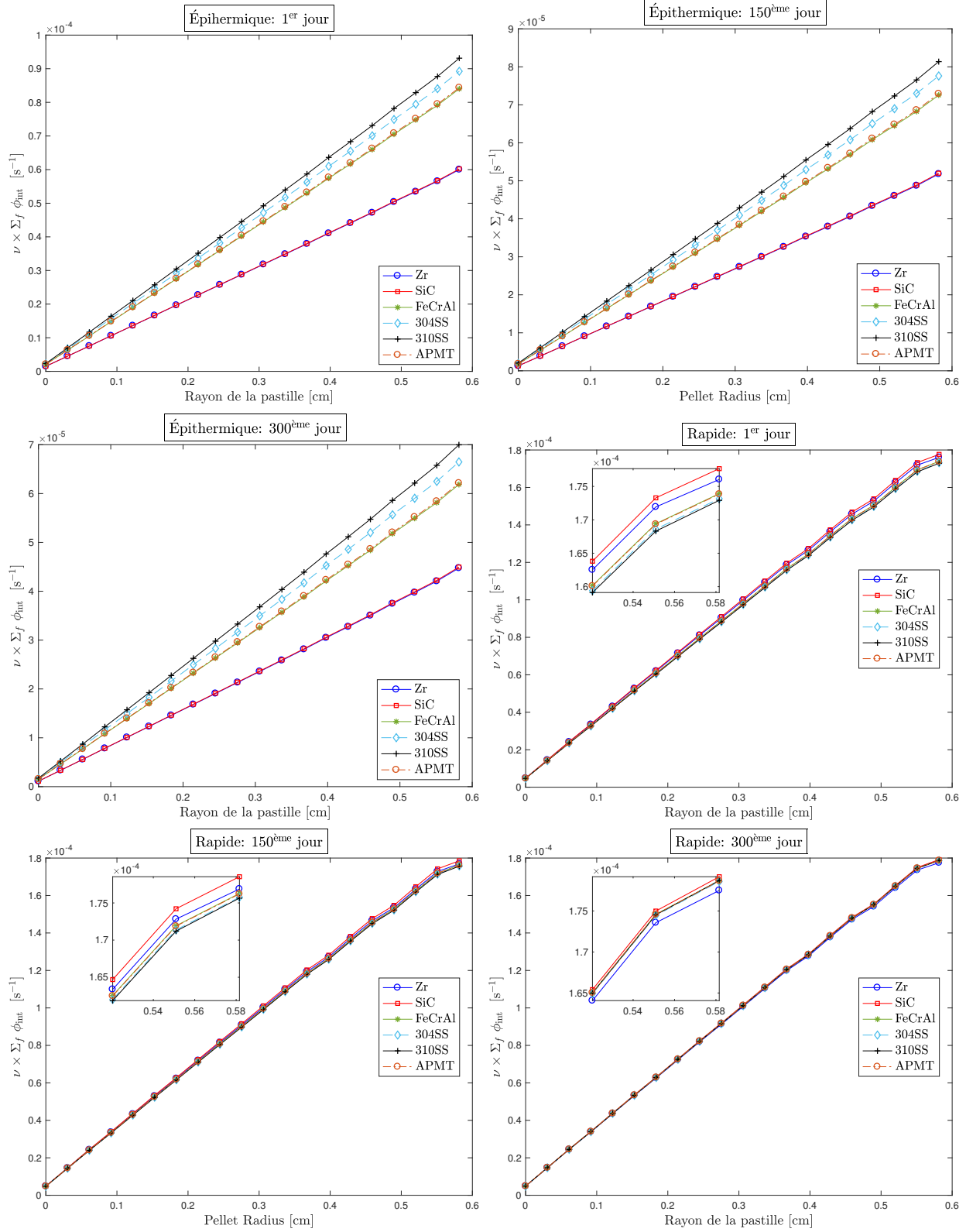


Figure E.6 Profil radial du taux de fission par neutrons épithermiques et rapides.

ANNEXE F CONSIDÉRATIONS SUPPLÉMENTAIRES POUR L'EMPOISONNEMENT

Présentation de la méthode de calcul

En premier lieu, la concentration du bore est introduite arbitrairement (raisonnablement) en g/cm^3 , lors du calcul de transport, dans le mélange réservé au modérateur. L'évolution est effectuée sur un cycle complet puis les COMPOS empoisonnées sont extraites pour une première interpolation pour un calcul de cœur entier. En second lieu, le calcul de diffusion est lancé pour les trois premiers jours (avec les mécanismes de contrôle de réactivité, i.e. ADJs et LZCs, à leurs positions nominales). On vérifie si la condition de criticité est atteinte au BOC, conformément au critère de convergence fixé. Si c'est le cas, les itérations prennent fin, sinon la concentration de bore est augmentée et la chaîne de calcul DRAGON-DONJON est relancée. Dans ce qui suit, on présente la conversion de la concentration en ppm ([Hébert et al., 2018](#)).

On sait que la concentration de bore en ppm est donnée par :

$$n_B[\text{ppm}] = \frac{\rho_B(\text{g}/\text{cm}^3)}{\rho_{\text{eau}}(\text{g}/\text{cm}^3)}. \quad (\text{F.1})$$

Où ρ_B et ρ_{eau} désignent, respectivement, les densités volumiques du bore et de l'eau lourde. En notant par M_B la masse molaire du bore et par N_A le nombre d'Avogadro, on peut écrire :

$$\rho_B[\text{g}/\text{cm}^3] = \frac{M_B}{N_A} \rho_B(\text{at}/\text{cm}^3). \quad (\text{F.2})$$

En substituant [F.2](#) en [F.1](#), on trouve :

$$n_B[\text{ppm}] = \frac{M_B}{N_A} \frac{\rho_B(\text{at}/\text{cm}^3)}{\rho_{\text{eau}}(\text{g}/\text{cm}^3)}. \quad (\text{F.3})$$

Pour un réacteur CANDU-6, $\rho_{\text{eau}} = 1.082885(\text{g}/\text{cm}^3)$. $\rho_B(\text{at}/\text{cm}^3)$ peut être extraite de la structure de données CPO contenant la base de données du réacteur. On y trouve la concentration du bore, après une homogénéisation appropriée, dans le répertoire ISOTOPESDENS en termes de $(\text{cm}\cdot\text{b})^{-1}$. Rappelons que : $1 (\text{cm}\cdot\text{b})^{-1} = 10^{24}\text{cm}^{-3}$.

ANNEXE G PERTURBATIONS DES PROPRIÉTÉS LOCALES ET GLOBALES AU LONG DU CYCLE

Comme pour le calcul de cellule, les propriétés locales de la grappe et globales du cœur ont été aussi perturbées au long du cycle, tout en maintenant une évolution en conditions nominales d'opération. Il y a au moins deux méthodes pour faire ce genre de calculs dans la chaîne DRAGON5-DONJON5. La première méthode (la plus *classique*) consiste à introduire les perturbations lors du calcul de transport et à transporter, pour chaque perturbation, deux **COMPOs** perturbées : une pour le combustible et une seconde pour le modérateur. Un calcul de cœur est ensuite lancé pour chaque perturbation. La deuxième méthode consiste à se fixer une gamme de perturbations lors du calcul de transport et de transporter une seule **MULTICOMPO** pour le calcul de diffusion. Le module **MCC** de DONJON5 permet d'introduire des perturbations locales uniformes ou non-uniformes au niveau des grappes du combustible. Ces deux méthodes ont été testées pour toute la gamme de perturbations étudiées et les résultats sont quasi-similaires. La Fig. [G.1](#) montre la réactivité du cœur pour chaque point de burnup en cas d'accident typique, soit une perte totale du caloporteur jumelée à une augmentation de température de +300 K.

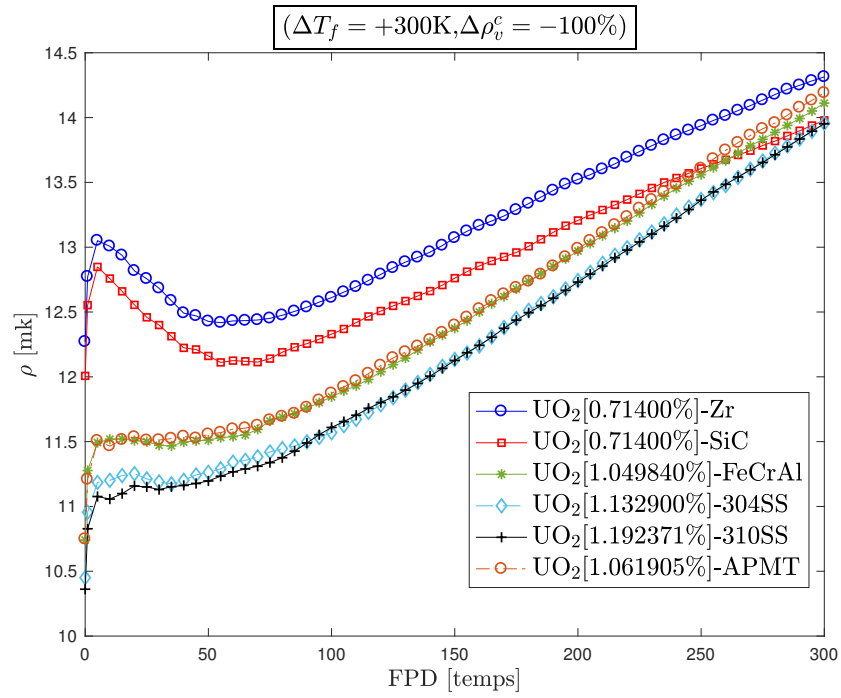


Figure G.1 Simulation d'un cas d'accident typique (perturbation de +300 K au niveau du combustible et perte totale du caloporteur) avec le module MCC: de DONJON5.

Les Figs. G.2 à G.7 montrent la même réactivité du système pour des perturbations typiques au niveau de la température du caloporteur, de celle du modérateur et du combustible, ainsi que la masse volumique du caloporteur et du modérateur.

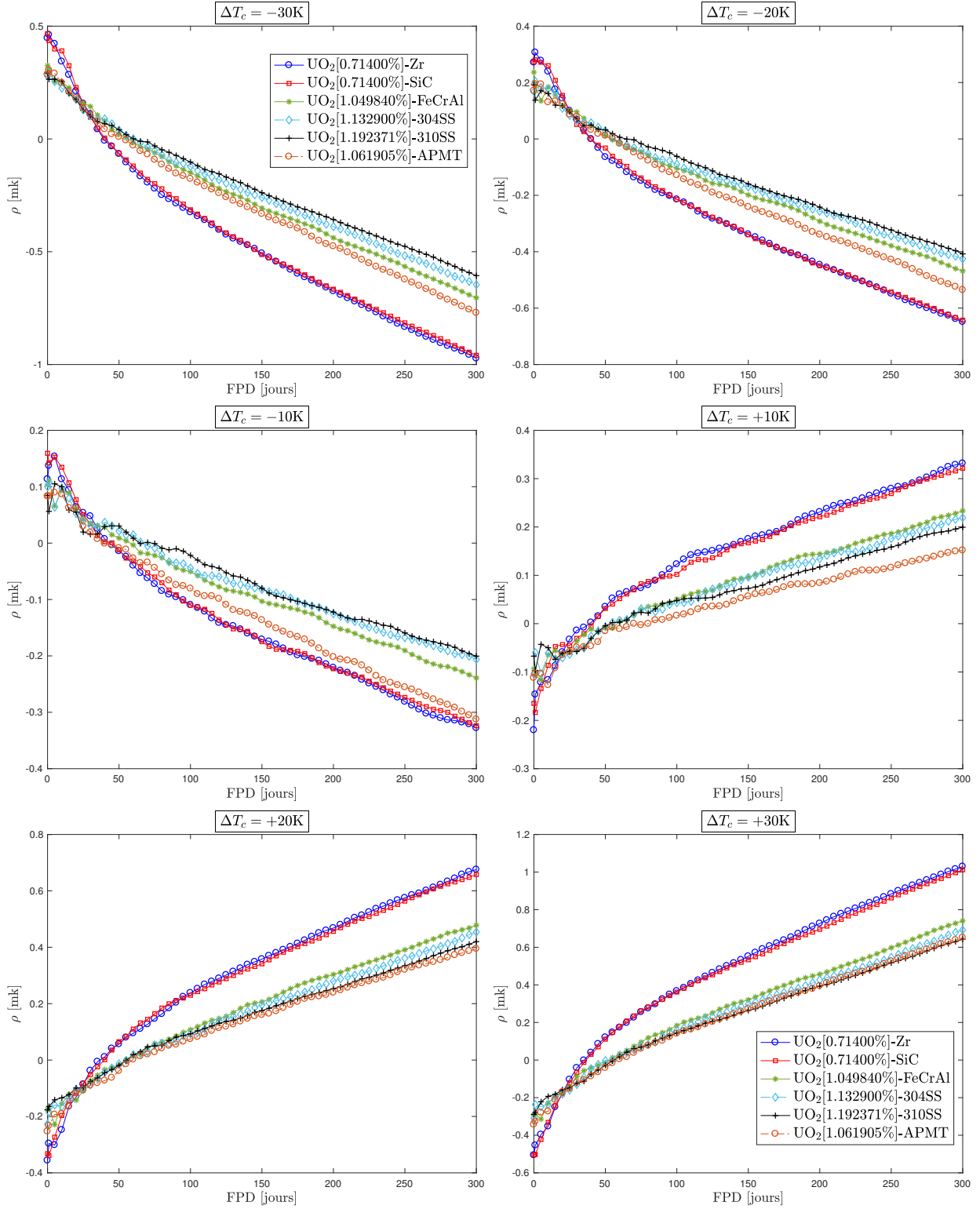


Figure G.2 Perturbations au niveau de la température du caloporteur (T_c) à différents pas de burnup.

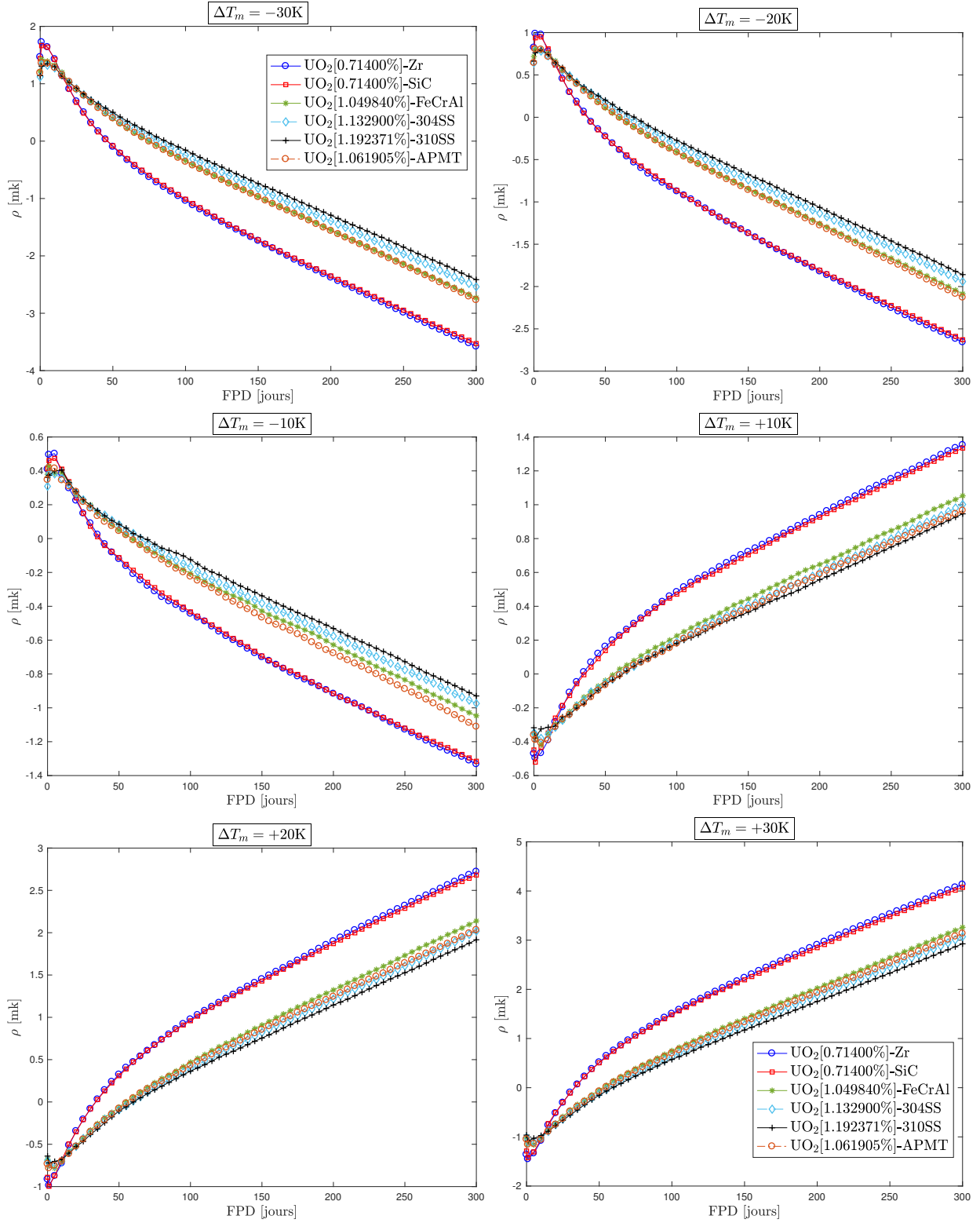


Figure G.3 Perturbations au niveau de la température du modérateur (T_m) à différents pas de burnup.

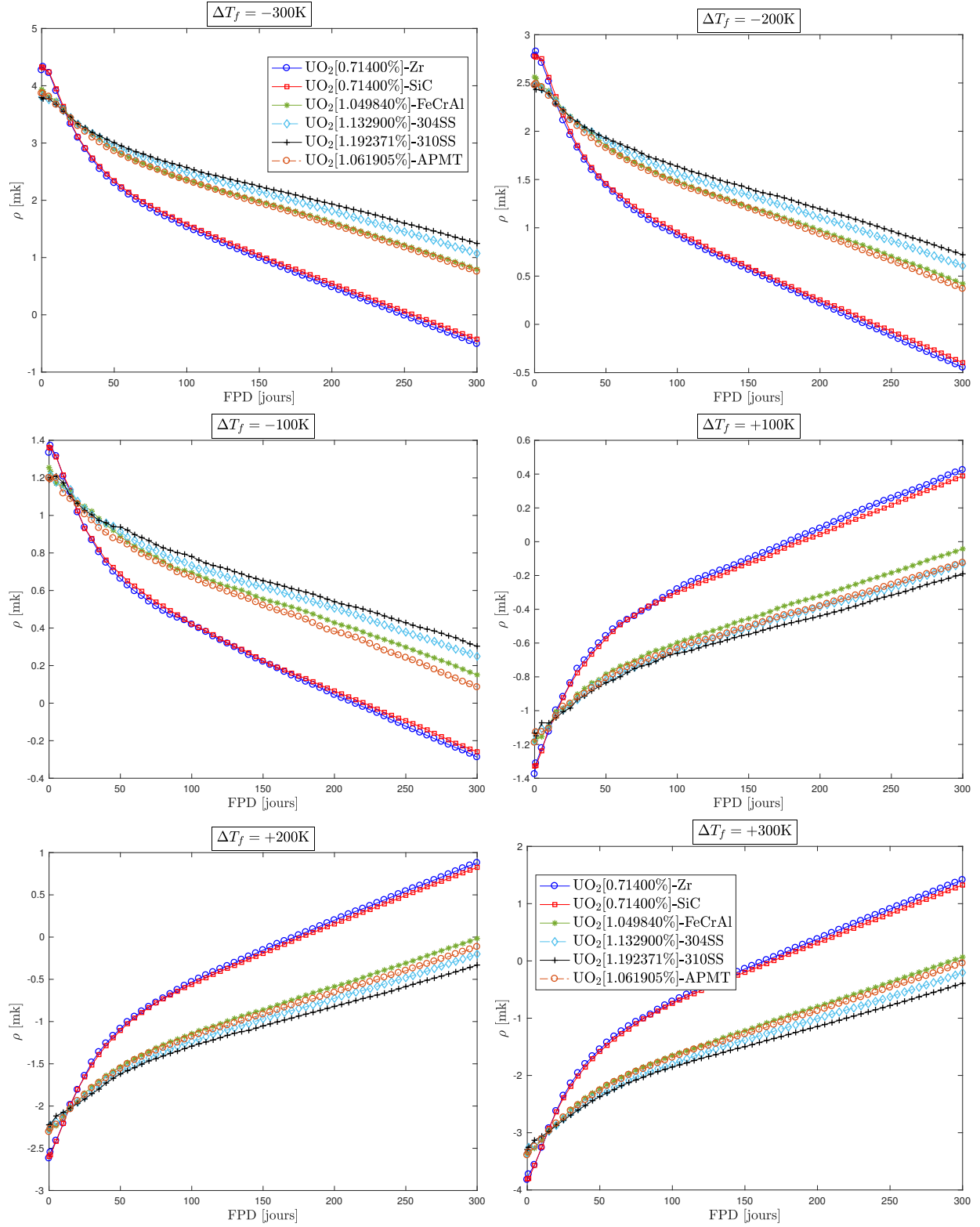


Figure G.4 Perturbations au niveau de la température du combustible (T_f) à différents pas de burnup.

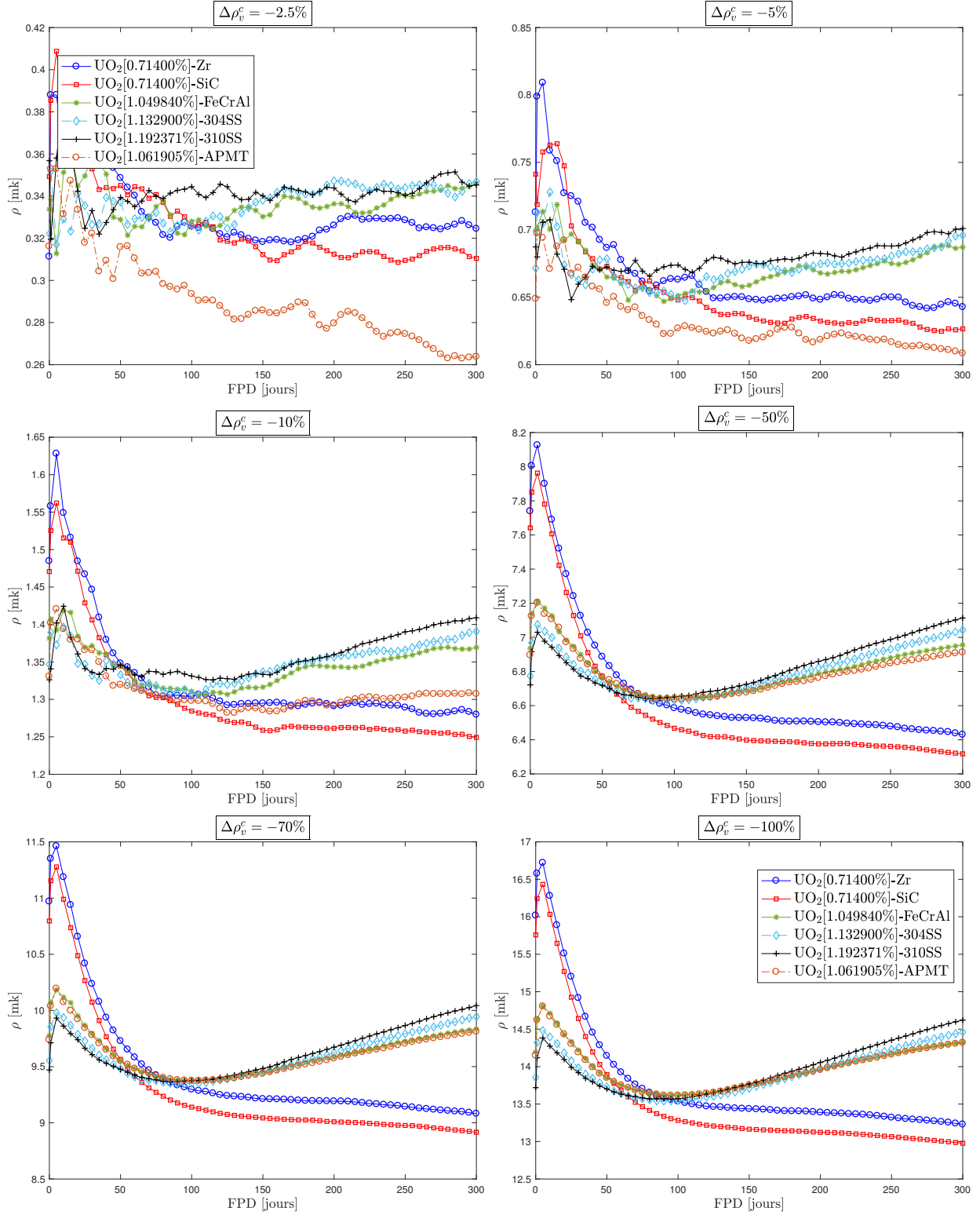


Figure G.5 Perturbations au niveau de la densité volumique du caloporteur (ρ_v^c) à différents pas de burnup.

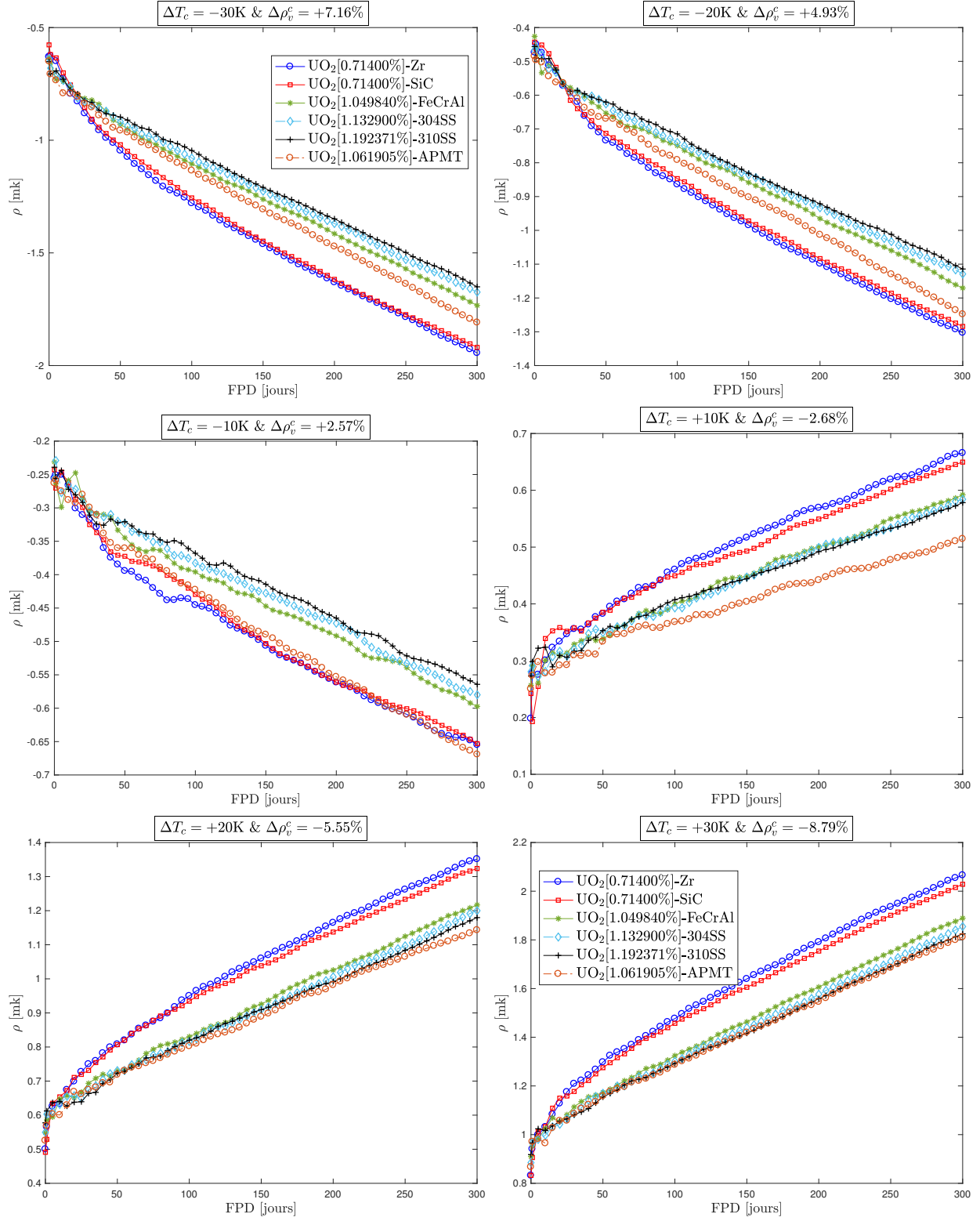


Figure G.6 Perturbations simultanées au niveau de la température et de la densité volumique du caloporteur (T_c, ρ_v^c) à différents pas de burnup.

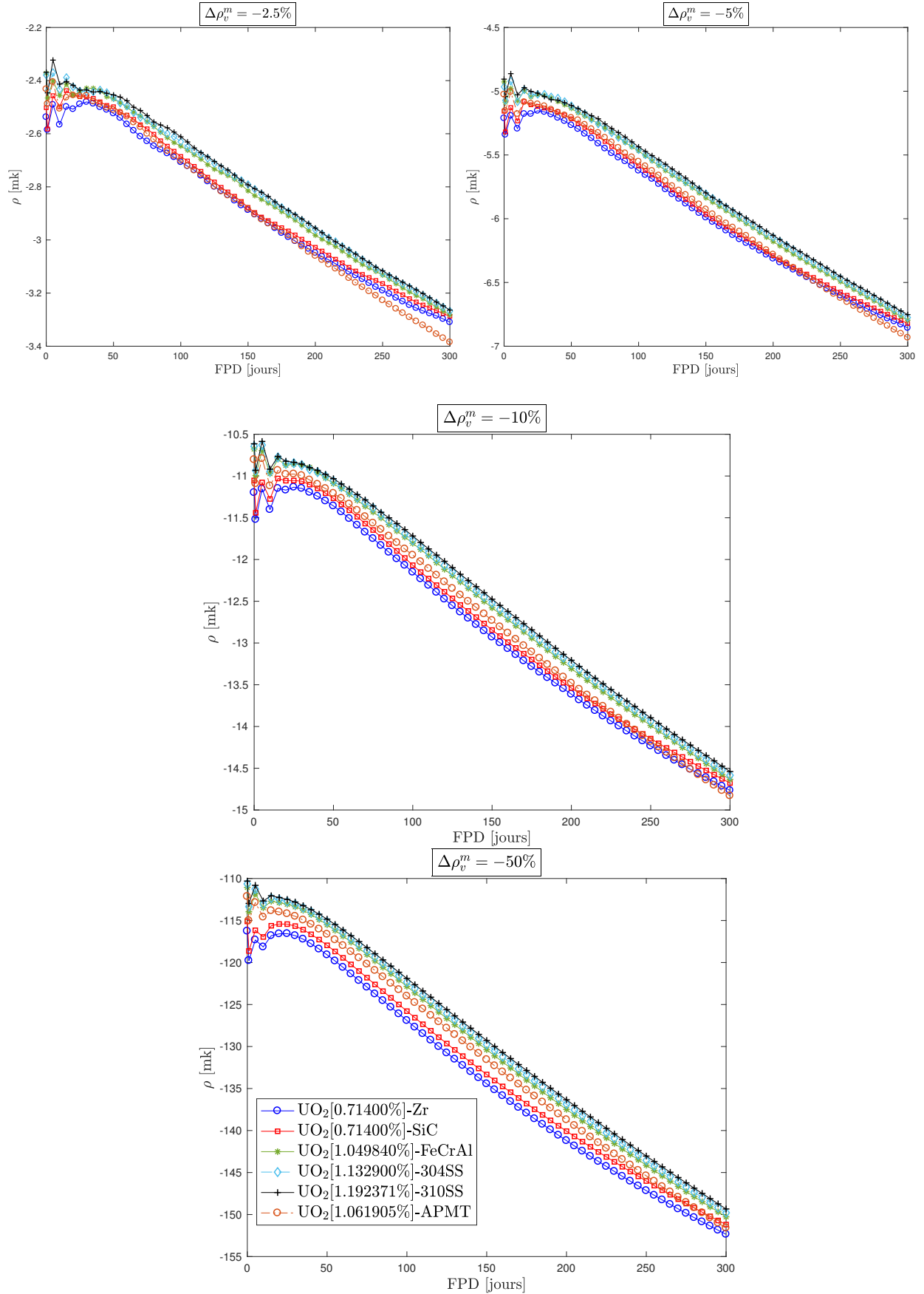


Figure G.7 Perturbations au niveau de la densité volumique du modérateur (ρ_v^m) à différents pas de burnup.

ANNEXE H SIMULATION D'UNE PERTE DES MÉCANISMES DE CONTRÔLE DE RÉACTIVITÉ AU 20^{ÈME} JOUR D'EXPLOITATION

Une perte totale des mécanismes de contrôle de réactivité est simulée au 20^{ème} jour d'exploitation, suivant la méthodologie présentée à la Section 5.4.6. Étant donné que l'événement est simulé à l'intérieur de la hausse du ^{239}Pu (autour du 35^{ème}), les systèmes, témoignant de la présence de ce pic au niveau de leurs facteurs de multiplications, reflètent une réactivité en hausse, alors que les systèmes à faibles facteurs de conversion, reflètent une réactivité en chute monotone. La Fig. H.1 montre la réponse des systèmes étudiés dans les heures suivant l'accident. Les Figs. H.2 et H.3 montrent, respectivement, l'évolution de la réactivité du cœur quant à une récupération instantanée et progressive des mécanismes. Il importe de rappeler que ces calculs viennent dans un cadre de neutronique et non de la cinétique des réacteurs. L'intérêt est porté sur l'évolution du combustible et des produits de fission et l'impact d'un tel événement sur la réactivité du cœur.

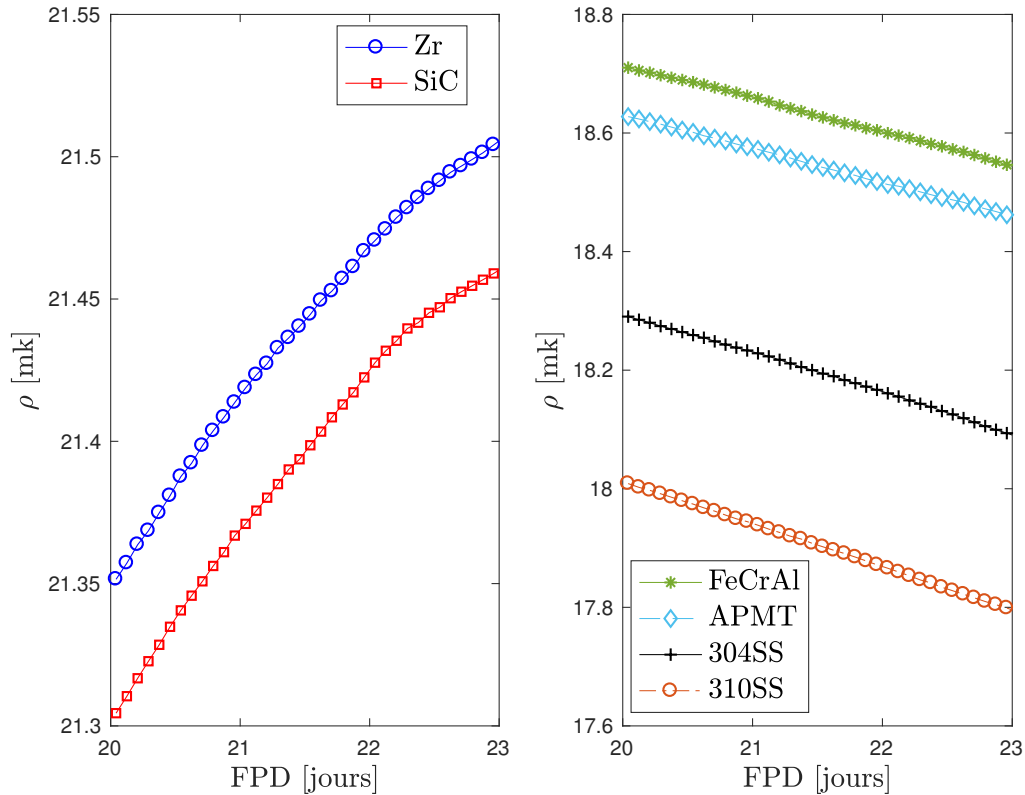


Figure H.1 Évolution de la réactivité du cœur suite à une perte totale des mécanismes de contrôle de réactivité au 20^{ème} jour.

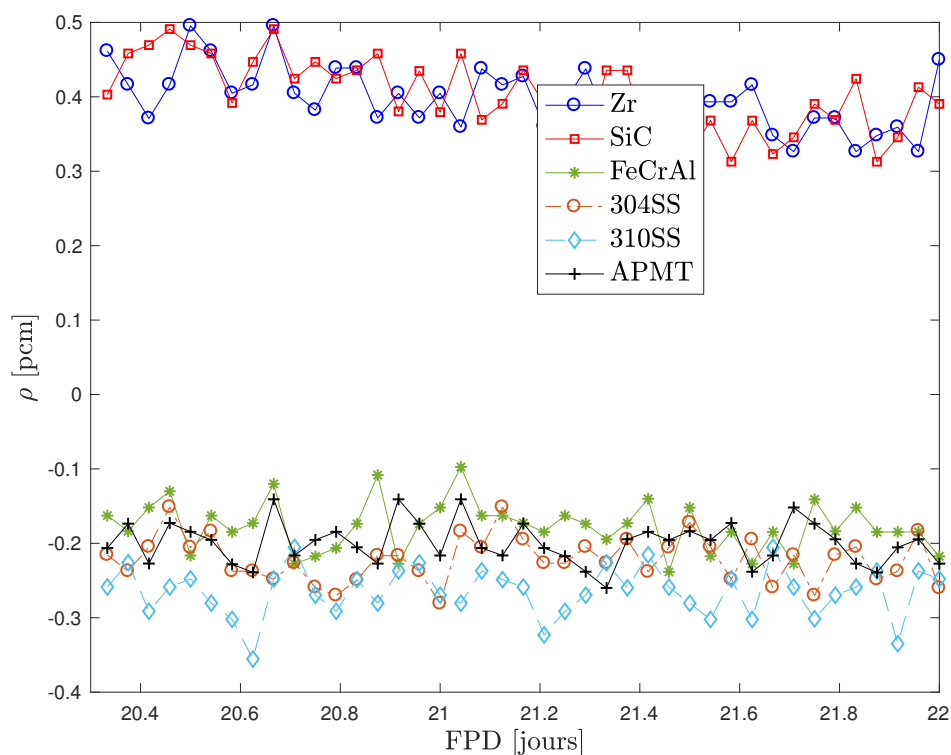


Figure H.2 Évolution de la réactivité du cœur suite à une récupération instantanée des mécanismes de contrôle de réactivité après 8 heures de déroulement de l'accident.

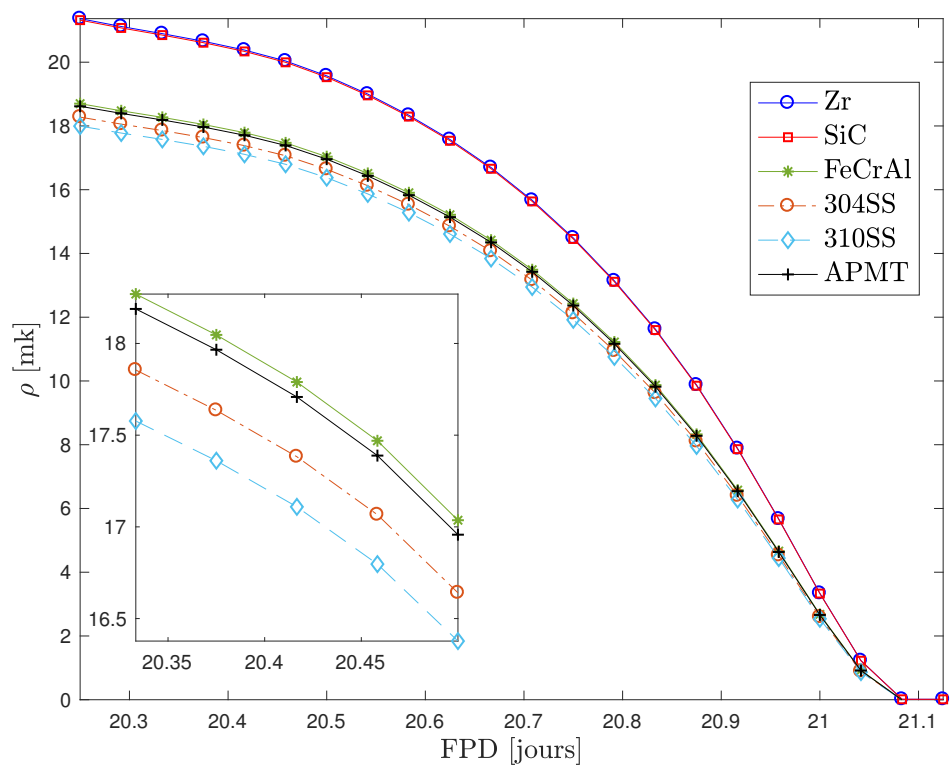


Figure H.3 Évolution de la réactivité du cœur suite à une récupération progressive des mécanismes de contrôle de réactivité après 6 heures de déroulement de l'accident.